

引用格式: XU Zheyuan, JIANG Ying, PAN Anlian. Research Progress on Exciton-polaritons in Two-dimensional Transition Metal Chalcogenides (Invited)[J]. Acta Photonica Sinica, 2022, 51(5):0551307

徐哲元, 蒋英, 潘安练. 二维过渡金属硫族化合物中激子-极化激元的研究进展(特邀)[J]. 光子学报, 2022, 51(5):0551307

二维过渡金属硫族化合物中激子-极化激元的研究进展(特邀)

徐哲元^{1,3,4}, 蒋英^{2,3,4}, 潘安练^{1,3,4}

(1 湖南大学 材料科学与工程学院, 长沙 410082)

(2 湖南大学 物理与微电子科学学院, 长沙 410082)

(3 微纳结构物理与应用技术湖南省重点实验室, 长沙 410082)

(4 光电集成创新研究院, 长沙 410082)

摘要: 二维过渡金属硫族化合物的直接带隙、大跃迁偶极矩、强激子结合能、可范德华集成和谷极化特性,使其在激子-极化激元研究与应用中显示出巨大潜力。当激发粒子密度达到一定程度时,激子-极化激元可通过受激散射凝聚成单个宏观量子态(玻色-爱因斯坦凝聚态),它们不受粒子数反转的限制,可实现超低阈值激光。同时结合其谷极化特性,可为强耦合状态的谷电子学应用如光自旋开关和谷极化双稳态器件等提供潜在应用。分别对二维过渡金属硫族化合物中的激子-极化激元、谷极化激子-极化激元和激子-极化激元的玻色-爱因斯坦凝聚的研究进展进行了系统综述,最后总结分析了未来实现二维激子-极化激元激光需解决的关键科学问题并对其发展进行了展望。

关键词: 低维半导体光与物质相互作用;激子-极化激元;二维过渡金属硫族化合物;谷电子学;玻色-爱因斯坦凝聚

中图分类号: O437

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20225105.0551307

0 引言

随着摩尔定律逼近其物理极限^[1-4],光电集成芯片因其高速、低功耗等优势而受到全球科技人员的关注,被认为是突破微电子芯片现有瓶颈的重要研究方向^[5-7]。其中,片上可集成激光光源是光电集成芯片的核心元件,开发低功耗且可片上集成的激光光源是实现片上光互连的关键环节^[8]。当前,研究人员一直在探索实现激光光源低功耗的解决方案与路径:一方面,从材料和工艺/器件出发,开发新材料和优化工艺是降低器件功耗的有效途径^[9-11];另一方面,从物理的角度出发,在纳米尺度上探索光与物质相互作用的新物理新机制被认为是与前者并行的降低功耗的另一条重要途径。

目前实际应用中的激光光源其运行机制大多基于同样的激射原理,即要求载流子密度达到一定程度来获得粒子数反转以实现激射^[12-14]。若能找到一种新的激射机制使其可以突破粒子数反转这一限制条件,将为低功耗光源器件的研发打开一扇全新的大门。基于玻色-爱因斯坦凝聚(Bose-Einstein Condensation, BEC)的激子-极化激元激光(Exciton-polariton lasers)正是这样一类激光光源。与常规激光器不同,激子-极化激元的玻色-爱因斯坦凝聚体本身就是一个宏观量子相干态,因此不需要粒子数反转来实现相干发射,这使得极化激元激光在低功耗方面具有很大的应用前景,从而成为科学家们研究的焦点。

基金项目: 国家自然科学基金(Nos. 52072117, 51972105, 51525202, 61635001, 61905071, 21703059),国家自然科学基金联合基金(No. U19A2090),湖南省科学技术厅重点项目(No. 2019XK2001),湖南省国际科技创新合作基地(No. 2018WK4004),武汉光电子学国家实验室开放项目(No. 2020WNLOK002)

第一作者: 徐哲元(1996-),男,博士研究生,主要研究方向为低维半导体材料光学性质研究。Email: zheyuan@hnu.edu.cn

通讯作者: 蒋英(1986-),女,副教授,博士,主要研究方向为低维半导体材料超快光谱学。Email: jying@hnu.edu.cn

潘安练(1974-),男,教授,博士,主要研究方向为低维半导体光电调控与集成。Email: anlianpan@hnu.edu.cn

收稿日期: 2022-01-24; 录用日期: 2022-04-18

<http://www.photon.ac.cn>

极化激元的概念可追溯至1951年,黄昆在研究声子和光子耦合时首次提出极化激元的经典理论^[15]。随后,HOPFIELD J J等证明了声子-光子极化激元的拉曼散射效应,并将该理论扩展至激子与光子相互作用的领域^[16]。自此,极化激元成为光学与凝聚态物理学的重要研究方向^[17-19]。激子-极化激元是腔光子和半导体中的激子发生强耦合后所形成的准粒子,其光子组分使之具有低有效质量和大群速度,其激子组分又使之具有与微观粒子相互作用的能力而易于被调控,可用于实现激光光源、开关和逻辑处理器等一系列具有高速、低耗和相干性质的光电子器件,同时也是研究室温宏观量子效应和发展量子通信与计算技术的优良候选体系^[20-27]。

过去人们对传统无机半导体(如GaAs)中的激子-极化激元进行了大量研究,但由于无机半导体较低的激子束缚能使得相关研究只能在低温下进行,不利于实际应用。采用具有高激子束缚能的有机半导体或宽禁带无机半导体(如GaN和ZnO),一定程度上可以解决只能低温观测的问题^[25, 28-33],但有机半导体会带来易损伤和强局域效应等问题^[34-36],而宽禁带无机半导体存在发光波长受限于短波段以及和衬底晶格失配等问题。

在这种情况下,二维过渡金属硫族化合物(Transition Metal Chalcogenides, TMDs)提供了一个在室温下研究和实现激子-极化激元现象的理想平台,具体体现为:1) 具有强偶极子振荡强度^[37],有利于与光场相互作用进入强耦合区域;2) 具有高激子束缚能(0.5~1 eV),激子在室温下可稳定存在^[37-43],有利于在室温下产生激子-极化激元量子态;3) 具有范德华可集成优势^[44, 45],避免与衬底晶格失配问题的同时可实现任意堆叠,从而获得满足各种需求的人工异质结构;4) 具有谷极化特性^[37, 46-48],可探索研究谷极化的激子极化激元,从而为激子-极化激元的研究扩展了一个新的维度。

本文聚焦于二维TMDs中激子-极化激元的实现与应用,首先介绍了二维TMDs中的激子-极化激元量子态,以及激子-极化激元的形成和调控方式;其次梳理了具有谷自旋性质的谷激子-极化激元量子态的观测和操纵;之后阐述了激子-极化激元玻色爱因斯坦凝聚现象的实现;最后总结分析了未来实现二维激子-极化激元激光需解决的关键科学问题并对该领域未来的发展进行了展望。

1 二维TMDs中的激子-极化激元

自1992年WEISBUCH C在量子阱微腔结构中证明激子-极化激元的存在以来^[20],已有许多报道在相似结构中实现准二维激子-极化激元^[24, 49-52]。相对于传统无机半导体,二维TMDs材料具有强激子结合能和大跃迁偶极矩等优势,因此基于二维TMDs材料和微腔体系的激子-极化激元拥有更长的寿命和更窄的线宽。近年来随着微腔制备水平的提高以及二维TMDs晶格材料的改善,二维TMDs激子-极化激元的研究受到了科研工作者的重点关注。

2015年,LIU Xiaoze等报道了对二维TMDs激子-极化激元的观测^[53]。通过在两个SiO₂/Si₃N₄分布式布拉格反射镜(Distributed Bragg Reflector, DBR)之间嵌入单层MoS₂形成法布里珀罗(Fabry-Pérot, FP)腔(图1(a))。在该微腔中,由于二维激子和腔光子之间的强耦合,导致新的本征态的出现,表现为角分辨反射光谱中激子能级两侧的明显的吸收峰(如图1(b),用红色实线标出),这两个模式分别对应下极化激元分支(Lower Polariton Branch, LPB;能量低于激子能级)和上极化激元分支(Upper Polariton Branch, UPB;能量高于激子能级)。通过耦合振荡模型可以得到,在给定面内波数 k_{\parallel} 时,激子-极化激元的本征能量 $E_{LP,UP}$ 为

$$E_{LP,UP} = \frac{1}{2} \left[E_{exc} + E_{cav} + i(\gamma_{cav} + \gamma_{exc})/2 \right] \pm \sqrt{g^2 + \frac{1}{4} \left[E_{exc} - E_{cav} + i(\gamma_{cav} - \gamma_{exc}) \right]^2} \quad (1)$$

式中, E_{exc} 是激子能量, γ_{exc} 和 γ_{cav} 分别是未耦合激子和共振腔的半线宽, g 是激子-光子耦合强度,且 $2\hbar\Omega = 2\sqrt{g^2 - (\gamma_{cav} - \gamma_{exc})^2/4}$ 为在 $E_{exc} = E_{cav}$ 时的拉比劈裂(Rabi splitting)间距^[49, 54, 55]。所以,如图1(c),LPB随着角度的增加逐渐蓝移并越来越接近激子能级,而UPB随着角度的增加远离激子能级——该反交叉行为是激子-极化激元的显著特征之一。在角分辨光致发光光谱(Photoluminescence, PL)中也可以发现类似的反交叉现象。此外,进一步的计算说明,对于小角度,LPB中光子组分贡献更大,而UPB中激子组分更占主导;对于大角度则相反,如图1(d),这表明LPB和UPB模式是激子和光子的混合态。该工作证实了单层二硫化钼基DBR微腔中激子-极化激元的形成。

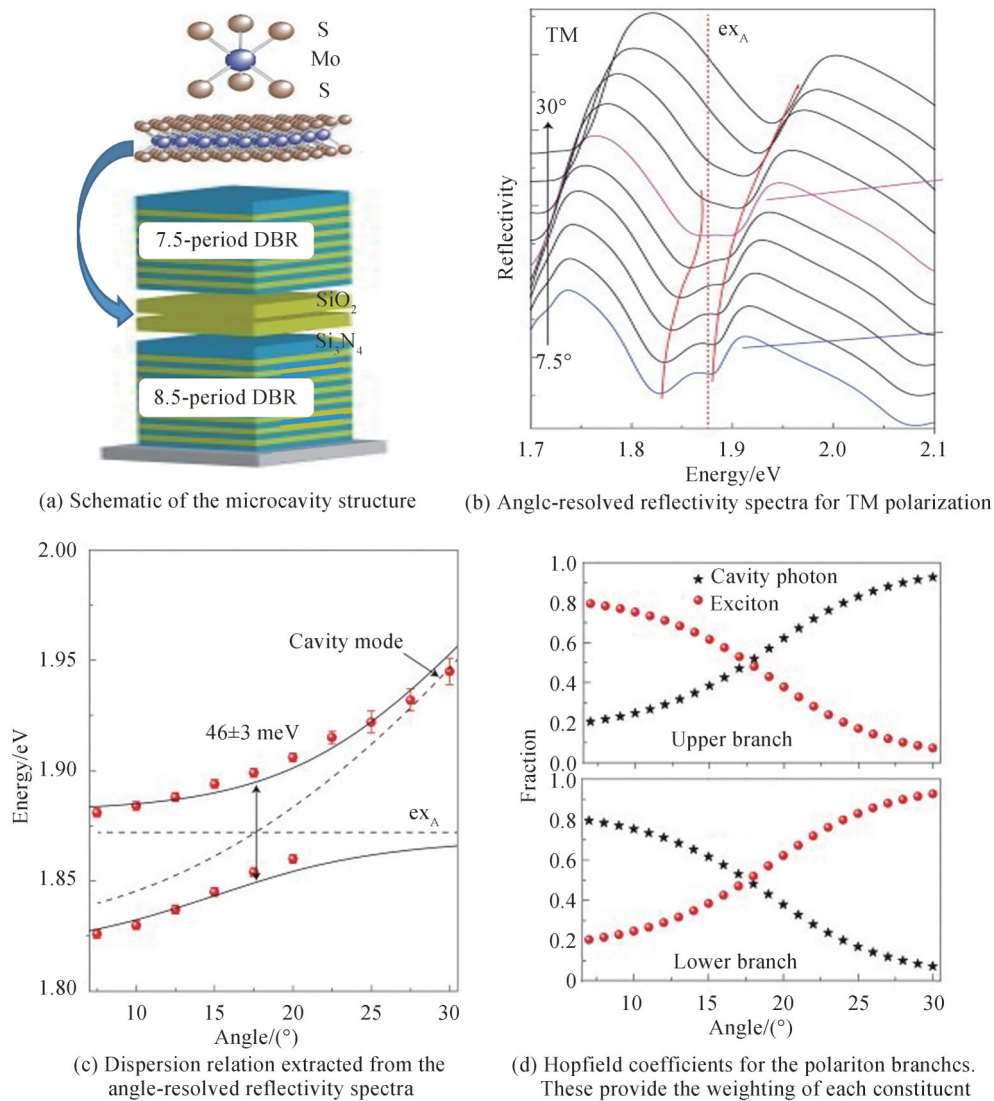


图1 MoS₂-DBR 微腔结构中的强光-物质耦合^[53]
Fig.1 Strong light-matter coupling in a MoS₂-DBR microcavity^[53]

布洛赫表面波(Bloch Surface Wave, BSW)是束缚在多层介质膜和半无限大均匀介质表面的一种电磁模式,它将电场限制在介质表面附近的一个小体积内^[56-58],这使得观察TMDs单层中极化激元-极化激元的非线性相互作用成为可能^[59, 60]。2018年,BARACHATIF等通过在盖玻片上覆盖介质布拉格反射镜,然后将单层WS₂转移到反射镜表面(图2(a)),实现了WS₂的A激子与布拉格反射镜的空气-介质界面处传播的BSW的强耦合^[61]。强耦合使下极化激元模式远离激子吸收并进入光谱的透明区域,由此产生的低损耗使极化激元传播长度可达33 μm,如图2(b),远高于嵌入单层TMDs的微腔中激子的传播距离(约1 μm)。而当极化激元密度比较高时,由于相空间填充(降低振荡强度)和粒子间库仑相互作用(导致极化激元模式蓝移),使极化激元通过它们的物质成分相互作用。所以,随着泵浦功率的增加,下极化激元模式发生蓝移,强度呈现超线性增强(图2(c)),反映了强的极化激元-极化激元非线性相互作用。该工作表明TMDs的BSW极化激元可以实现强非线性和长距离传播。

此外,单层TMDs中的激子会受到环境中电无序的显著影响,导致其谱线的非均匀展宽^[62]和迁移率的下降^[63]。基于此,2021年,WURDACK M等研究了介电无序对激子-极化激元性质的影响^[64],该工作研究了样品不同区域中形成的可自由移动和被势阱捕获的激子-极化激元(图3(a)),发现两者的谱线非均匀展宽相比于激子的都要明显减少(图3(b)),表明激子-极化激元受衬底介电无序的影响要小,同时该工作表明即使伴随着介电无序的参与,激子-光子仍能在室温下发生强耦合。此外,介电无序还会导致激子的快速退

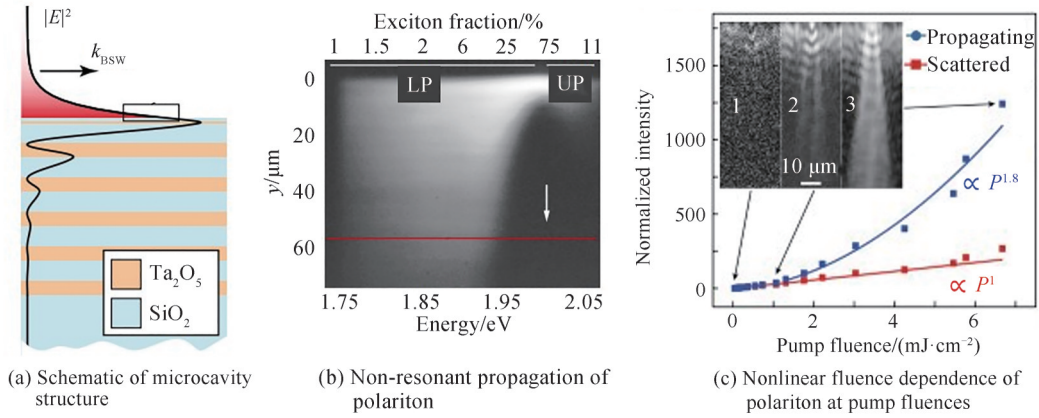


图2 单层二硫化钨微腔体系中相互作用的极化激元流体^[61]
 Fig.2 Interacting polariton fluids in a WSe₂-microcavity system^[61]

相干(图3(c),黑点所示动力学曲线),其退相干的时间约为60 fs。而激子-极化激元的退相干时间则大大延长,这进一步表明WS₂激子-极化激元的宏观相干几乎不受介电无序的影响,而只由它们的辐射寿命和散射过程决定。并且相对于自由激子-极化激元,线宽窄化和宏观相干性在势阱中得到进一步增强。该工作表明限制激子性能的介电无序对于激子-极化激元的影响可显著降低。

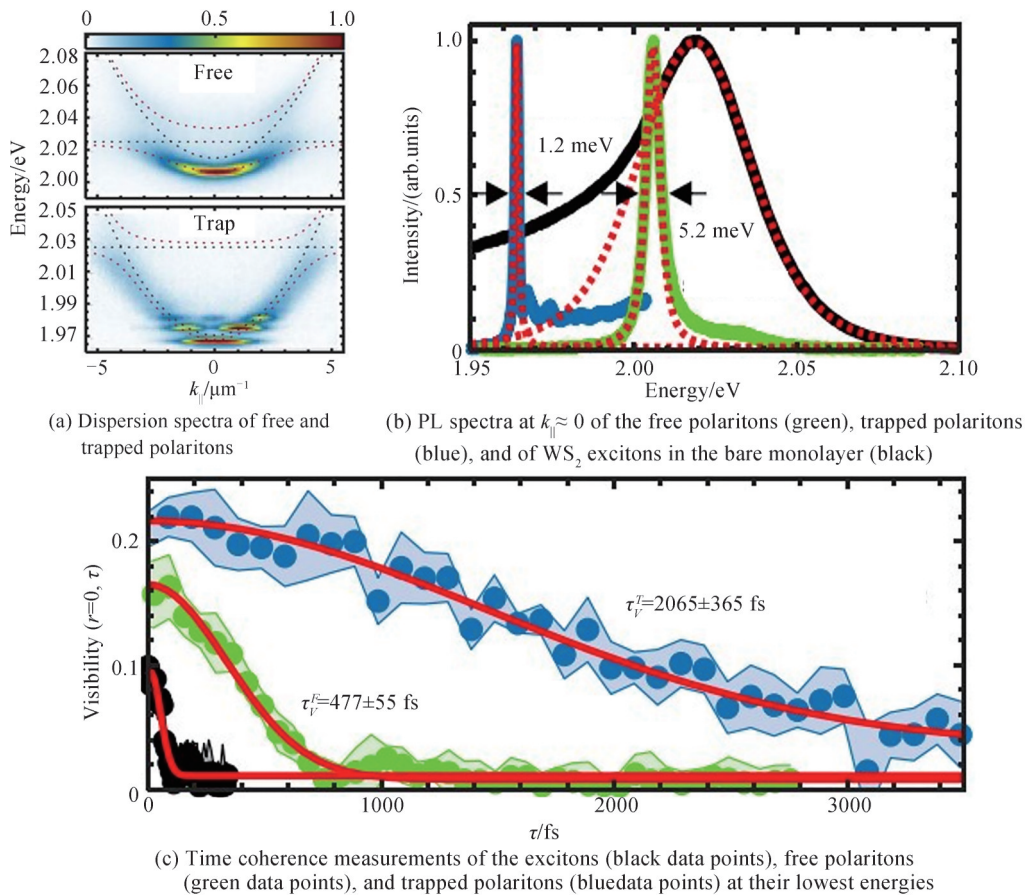


图3 室温下WS₂单层中自由和束缚激子-极化激元的光学特性^[64]
 Fig.3 Optical properties of the free and trapped exciton-polaritons in WS₂ monolayers at room temperature^[64]

近期,LACKNER L等基于FP腔,设计了开放式的腔体——微腔由两个SiO₂/TiO₂ DBR组成,中间被空气间隙隔开,可在室温下实现与单层WS₂的强耦合^[65]。如图4(a)所示,通过镱离子束在顶部DBR中塑造半球状陷阱(直径D = 5 μm),制成不同陷阱间距(A)的一维光子晶格。由于半球状陷阱中的极化激元会产

生不同的限域模式,改变半球状陷阱的重叠密度(D/A 比值),可以很好地调控这些限域模式,从而实现对 TMDs 极化激元的限域调控。当固定陷阱重叠密度为 $D/A = 1.7$ 时,通过将上下两个 DBR 都连接到三维纳米位置控制器(图 4(c)),可纳米级精度调控腔长,实现按需改变光学共振条件来控制激子与光子的耦合强度,从而实现布洛赫极化激元其本征能量的可控调谐。如图 4(d)所示,在腔长改变约 135 nm 时,极化激元的能带结构发生显著变化,s(品红色圆圈)和 p 带(紫色方块)的能量变化高达 85 meV(s 和 p 带分别为 s 和 p 轨道的 sigma 耦合产生的能带)。该工作为探索新的激子-极化激元现象及其器件提供了有效途径。

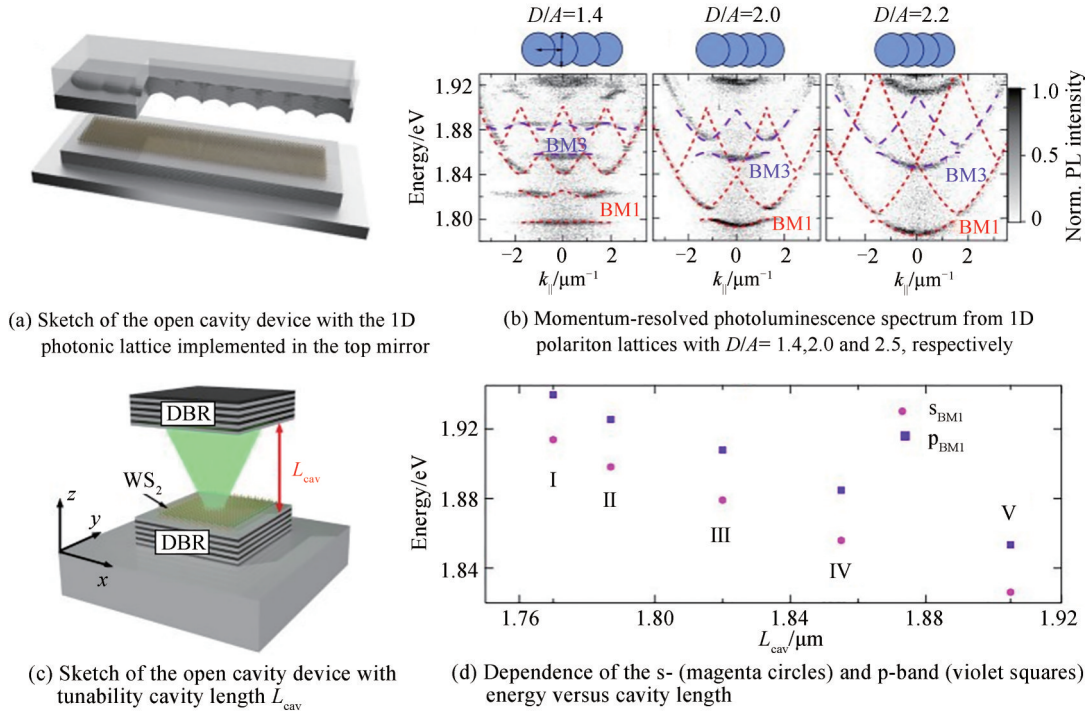


图4 室温下 WS_2 -光子晶格体系中的可调谐激子-极化激元^[65]

Fig.4 Tunable exciton-polaritons emerging from WS_2 monolayer excitons in a photonic lattice at room temperature^[65]

二维 TMDs 极化激元系统大多基于垂直 FP 腔,该腔由厚厚的平面 DBR 堆叠而成,单层 TMDs 嵌在腔场最强处。该过程复杂且难以控制,并且可能会改变或降低二维 TMDs 的光学特性^[20, 66]。2018 年, ZHANG Long 等设计了一种由亚波长厚的氮化硅光栅制成的一维介电光子晶体(Photonic Crystals, PC),将单层 TMDs 直接放置在 PC 上即可形成强耦合体系^[67](图 5(a))。强耦合条件为:上下激子-极化激元的最小模式劈裂大于腔和激子模式的半线宽之和^[55, 68, 69],即

$$2\hbar\Omega > \gamma_{cav} + \gamma_{exc} \text{ or } g > \sqrt{(\gamma_{exc}^2 + \gamma_{cav}^2)}/2 \quad (2)$$

如图 5(b)所示,对于 WSe_2 -PC 体系,10 K 下的角分辨 PL 光谱表明 WSe_2 激子与 PC 模式之间存在强耦合,产生了激子-极化激元。并且由于 PC 中的光栅的各向异性排布,其对场的传播方向和偏振方向都很敏感,导致激子-极化激元同样具有高度的各向异性。因此,沿着不同方向测量的色散曲线之间存在巨大的差异。而随着温度的升高,声子散射作用增加导致激子退相加快。因此,强耦合状态能够维持到约 110 K,之后,由于激子线宽的增加^[70, 71], $g(T) > \sqrt{(\gamma_{exc}^2 + \gamma_{cav}^2)}/2$, 系统转变为弱耦合状态(图 5(c))。而对于激子振荡强度与线宽之比更大的 WS_2 材料^[72],可在室温下实现与 PC 的强耦合。因此,通过灵活可调的 PC 结构可以较容易地实现激子-极化激元的形成。

由于电致激子-极化激元难以实现, TMDs 中激子-极化激元的研究集中在光泵浦的方式下实现,直至 2019 年 GU Jie 等在嵌有二维范德华异质结构的 DBR 微腔中观察到了激子-极化激元的室温电致发光(Electroluminescence, EL)^[73],该器件的结构示意图和异质结的能带排布如图 6(a)和(b)所示,通过施加偏压注入的电子和空穴可从石墨烯电极穿过超薄 hBN 势垒到达单层 WS_2 中进行复合发光。如图 6(c),在施加

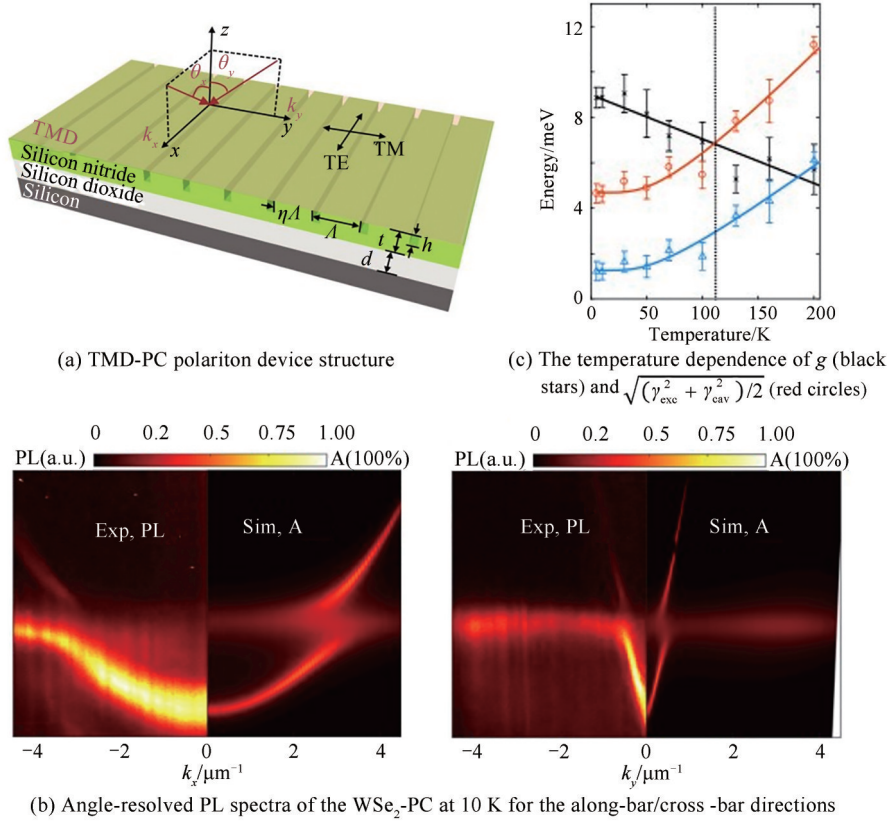


图5 WSe₂-光子晶体中的激子-极化激元^[67]
Fig.5 Exciton-polaritons in a WSe₂-PC system^[67]

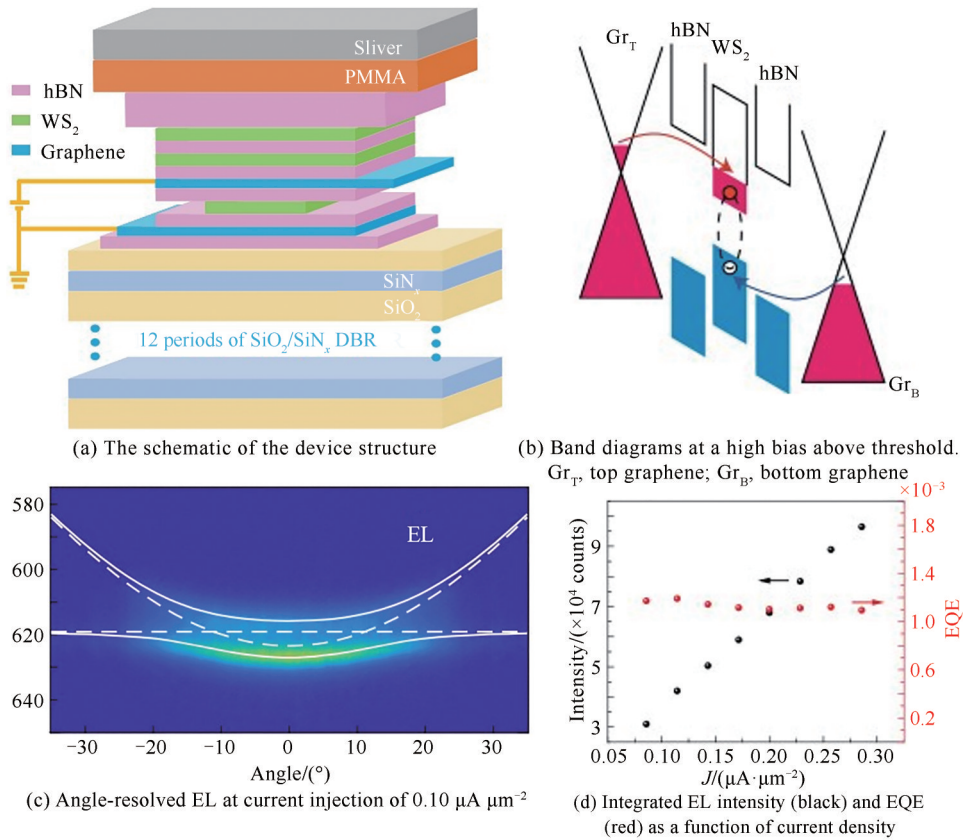


图6 基于单层WS₂的室温激子-极化激元发光二极管^[73]
Fig.6 A room-temperature polariton light-emitting diode based on monolayer WS₂^[73]

外部直流电时,角分辨EL光谱中观测到明显的上下激子-极化激元模式和反交叉色散行为,且与其PL光谱的色散行为一致,证明电注入产生了强耦合的激子-极化激元。图6(d)展示了EL强度随注入电流密度增加而线性增强,从中可提取出该器件的外量子效率(External Quantum Efficiency, EQE)约为0.1%。该工作表明通过优化微腔的品质因子和提高hBN质量可进一步提高激子-极化激元的电致发光效率,这将有助于电驱动激子-极化激元激光器的实现。

综上,二维TMDs材料中室温激子-极化激元的实现以及腔结构对其性质的操纵(见表1),表明了二维TMDs材料在激子-极化激元的研究和应用方面具有明显优势。

表1 二维TMDs中的激子-极化激元
Table 1 Exciton-polariton in two-dimensional TMDs

Material	Cavity	Rabi splitting /meV	Temperature	Pump source	Ref.
MoS ₂	DBR	46	RT	CW laser	[53]
WS ₂	Dielectric mirror	43	RT	---	[61]
WS ₂	DBR	25	RT	---	[64]
WS ₂	DBR	19	RT	CW laser	[65]
WSe ₂	PC	17.6	10 K	CW laser	[67]
WS ₂	PC	22	RT	CW laser	[67]
Gr/hBN/WS ₂ /hBN/Gr	DBR	~33 (EQE: 0.1%)	RT	Electric injection	[73]

Note: DBR: distributed Bragg reflector; PC: photonic crystals; EQE: external quantum efficiency; CW laser: continuous wave laser

2 二维TMDs中的谷激子-极化激元

能谷,指的是晶体中布洛赫电子能带在动量空间中的极值状态。单层TMDs中,由于空间反演对称性的破缺和强自旋轨道耦合,导致在动量 K 空间中形成了两个能量相同但并不简并的谷。两个谷中的自由载流子或激子具有不同的特性,如电子自旋、轨道角动量、动量以及光学选择定则等。因此,通过利用激发光的圆偏振性质,可以选择性地操纵电子的能谷属性,这使得能谷成为了类似于电荷和自旋的信息载体。能谷电子学(Valleytronics)的研究正在成为凝聚态物理、信息科学、量子计算等领域的研究热点。

单层TMDs中激子的能谷自由度使其与光发生强耦合时产生的激子-极化激元量子态也具有谷极化选择特性,且可被圆偏振光来选择性激发与探测。2017年CHEN Y J等在MoS₂-DBR平面微腔(MC-MoS₂)中探索了激子-极化激元的谷极化^[74](图7(a))。如图7(b)所示,在8 K温度下,MC-MoS₂中形成的上激子-极化激元分支(UP)和下激子-极化激元分支(LP)均具有明显的谷极化度(谷极化度 $\rho = (I_+ - I_-)/(I_+ + I_-)$, I_+ 、 I_- 分别为PL的右旋和左旋分量; $\rho_{UP} = 19\%$, $\rho_{LP} = 29.5\%$),其值与单层MoS₂中激子的谷极化度($\rho_{bare} = 40\%$)接近,表明MC-MoS₂中谷极化激子-极化激元量子态的形成。同时MC-MoS₂中UP和LP的谷极化度随温度的变化关系不如单层MoS₂中的显著,其在室温下仍分别保留了7.5%和13%的谷极化度,而单层MoS₂其激子的谷极化度随温度升高快速降至0%左右。这是由于单层MoS₂其激子的谷极化度(ρ_{bare})主要由激子弛豫速率(Γ_{ex})和谷间散射速率(Γ_v)的比值决定($\rho_{bare} = A_{bare} \left/ \left(1 + \frac{2\Gamma_v}{\Gamma_{ex}} \right) \right.$, A_{bare} 是裸激子体系中与光泵浦参数相关的常数)^[75, 76],随着温度升高,由于热激活声子辅助谷间散射而显著加快^[76, 77],导致激子的谷极化度随温度上升而快速下降。而对于MC-MoS₂中的激子-极化激元,其谷极化度公式可表示为 $\rho_{MC} = A_{MC} \left/ \left(1 + \frac{2\Gamma_v}{\Gamma_{ex} + \Gamma_c} \right) \right.$ (A_{MC} 是微腔中与光泵浦参数相关的常数),其中 Γ_{ex} 和 Γ_c 分别为该准粒子态中激子部分和光子部分的弛豫速率,显然激子-极化激元的弛豫速率($\Gamma_{ex} + \Gamma_c$)要快于激子本身的弛豫速率(Γ_{ex}),这也是其在室温下仍可观察到较明显的谷极化度的原因。

同年,SUN Zheng等在嵌有单层WS₂的微腔中研究了其激子-极化激元的谷极化特性^[78],该微腔结构如图8(a)中插图所示。实验中首先使用圆偏振光共振泵浦WS₂A激子,观测到了激子-极化激元明显的谷极化行为,其谷极化度约为27%(图8(b))。由于激子-极化激元中的光子和激子分量对谷极化的贡献不同(其

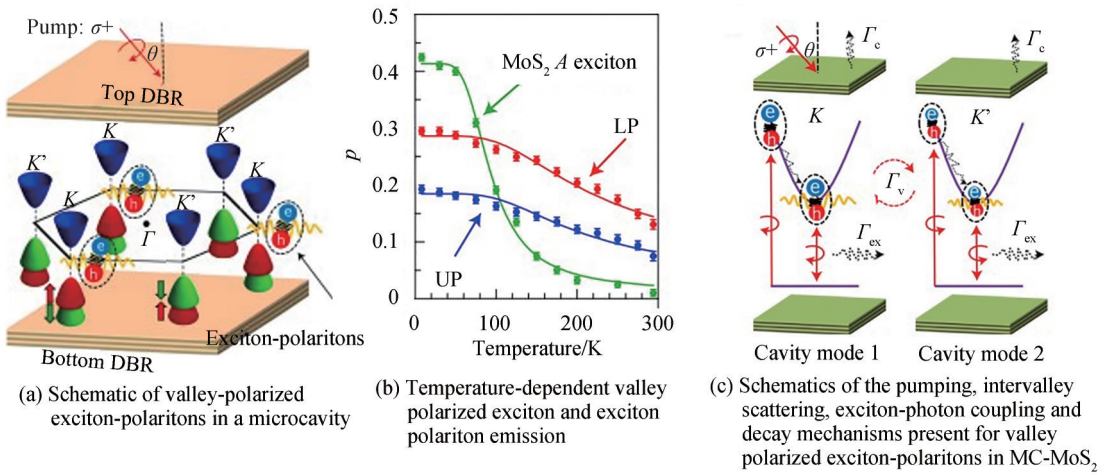


图7 MoS₂-DBR 微腔中的谷极化激子-极化激元^[74]
Fig.7 Valley-polarized exciton - polaritons in a MoS₂-DBR microcavity^[74]

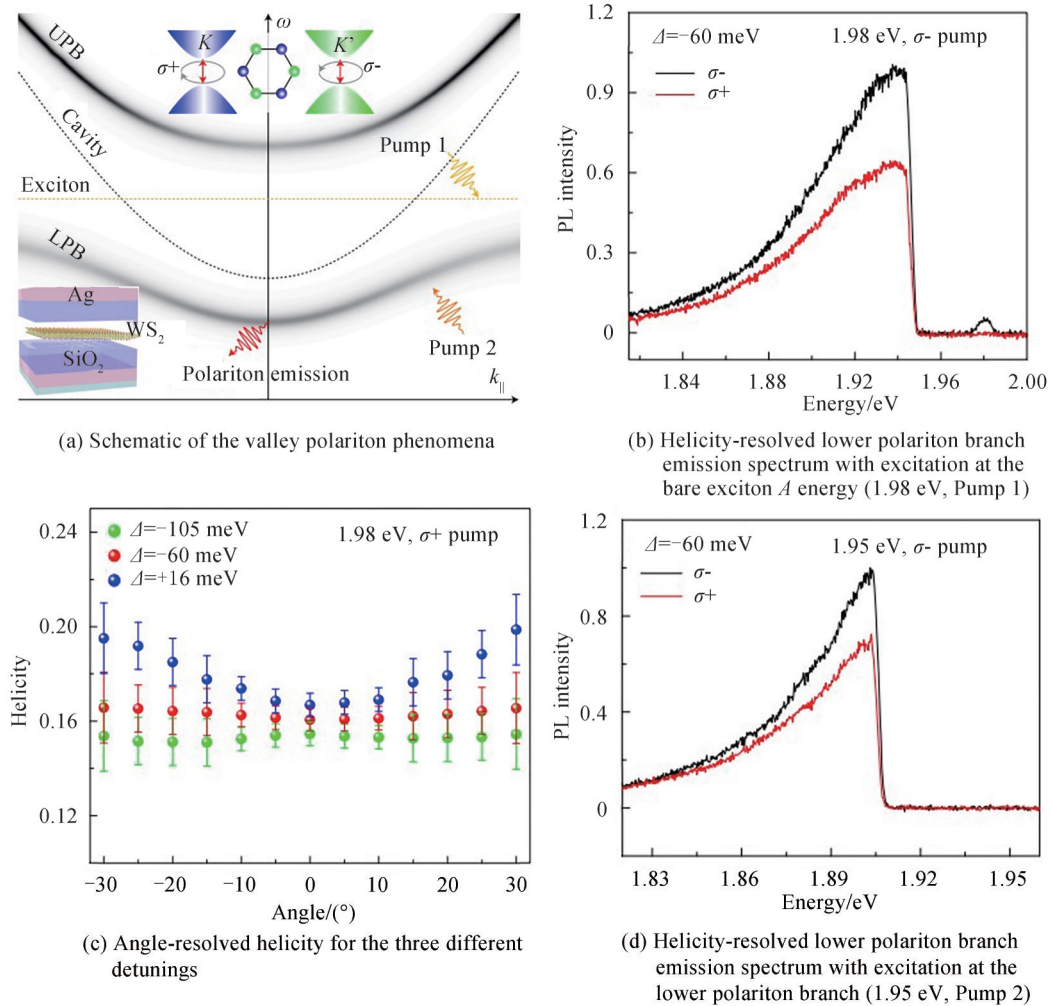


图8 室温谷极化激元的光学控制^[78]
Fig.8 Optical control of room-temperature valley polaritons^[78]

中光子分量促进谷极化弛豫且随角分辨荧光光谱探测角度增加而减少,而激子分量有利于谷相干作用且随角分辨荧光光谱探测角度越大激子分量占比越大,因此在该工作中随着探测角度变化,两种效应相互竞争,导致谷极化激元具有明显的角度依赖特性(图8(c))。此外,通过改变微腔结构中顶部银镜厚度可调节

微腔中模式的失谐程度($k=0$ 处 $\Delta = E_{\text{cavity}} - E_{\text{exciton}}$),实验发现随着失谐程度的增大(激子分量增多),谷极化弛豫受到抑制,激子-极化激元的谷极化度得到增强(图8(c))。同时该实验发现即使共振泵浦下极化激元分支,仍能观测到极化激元约14%的谷极化度(图8(d))。这种室温谷极化激元的可调谐性有助于实现在一定范围内连续可调的谷自旋激光器件。

值得注意的是,2019年LUNDT N等通过将单层MoSe₂集成到高品质因子的DBR微腔中,使用双光子近共振激发方式,在5 K下观测到了高达90%的激子-极化激元谷极化度^[79](图9(a)),如此高的谷极化度被认为来源两方面的因素:一是共振激发和低温探测抑制了弛豫过程中的非弹性散射过程^[76, 80];二是光与物质的强耦合导致准粒子辐射寿命的降低以及极化激元去极化时间的延长^[74, 81],从而提高了极化激元的谷极化度。同时在该体系中还观察到了极高的谷相干行为,利用线偏振光近共振双光子激发(图9(b)),可以观察到超过90%的线偏振极化度(Degree Of Linear Polarization, DOLP),表明强光-物质耦合可用于产生和控制谷极化激元的相干叠加。基于对谷极化和谷相干的操控,该实验进一步观察到了光学谷霍尔效应^[82](图9(d))。该工作表明双光子激发和强耦合腔的结合极大丰富了TMDs中激子-极化激元的能谷调控行为。

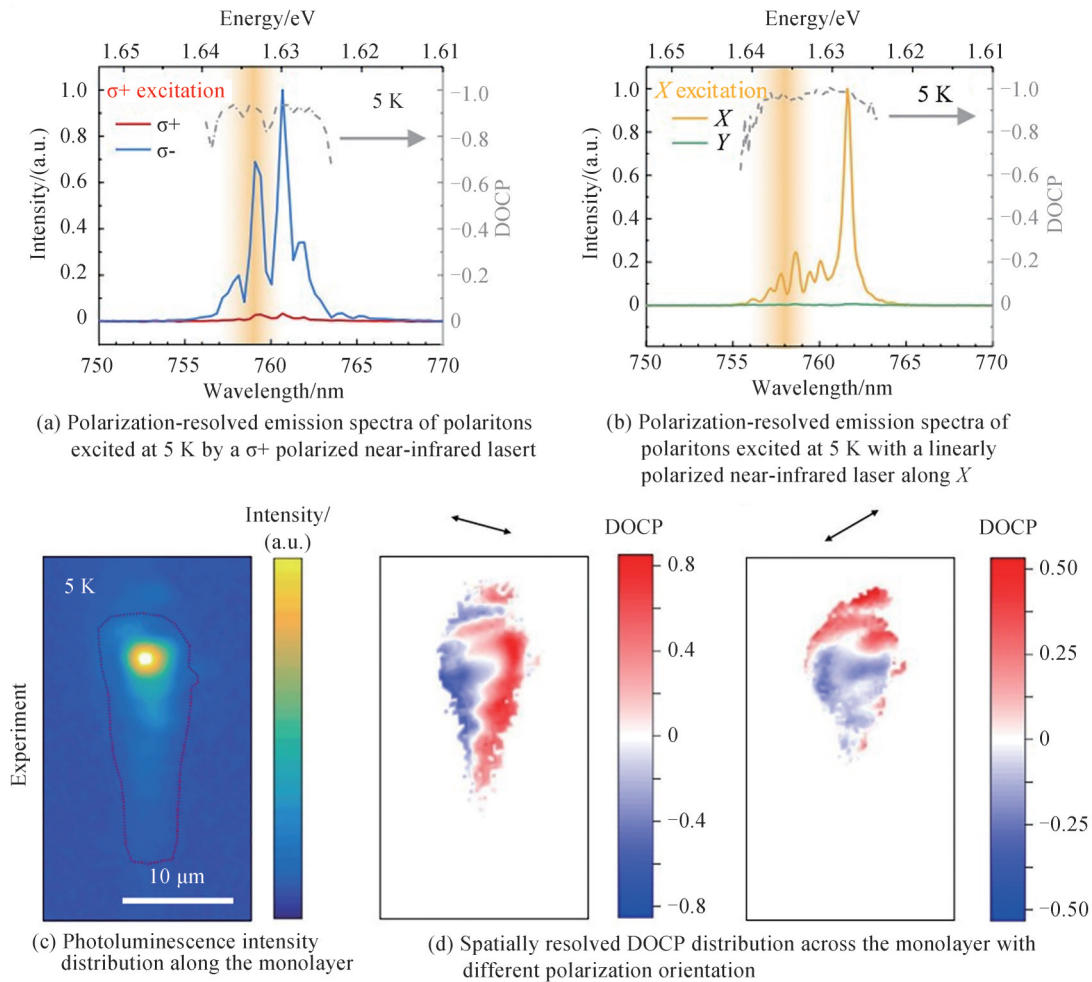


图9 MoSe₂-DBR微腔中高谷相干激子-极化激元的光学谷霍尔效应^[79]

Fig.9 Optical valley Hall effect for highly valley-coherent exciton-polaritons in a MoSe₂-DBR microcavity^[79]

虽然已在低温下实现对激子-极化激元的谷相干操纵,但在室温下由于声子、电子-空穴相互作用或Maialle-Silva-Sham机制介导的谷间散射退相干过程^[83],使得室温下操控谷自由度具有很大难度。考虑到钨基TMDs材料中存在低能暗激子态,不受交换诱导去极化机制的影响^[84],有利于观察谷极化和谷相干过程。基于此,2019年QIU L等构筑了WSe₂-DBR微腔,实现了对室温激子-极化激元谷相干的观测^[85]。从图10(a)、(b)中可以看到,出射荧光的偏振方向与入射激光保持一致,表明激子-极化激元保持了谷间相位

相干性。谷相干是激子弛豫和退相干过程相互竞争的结果。激子与腔光子的强耦合引入了额外的弛豫路径——腔光子弛豫,且该通道没有退相干,因此提高了激子-极化激元的谷相干性。所以,相对于裸激子几乎可以忽略的DOLP(图10(d)),激子-极化激元具有明显的DOLP(图10(c))。室温激子-极化激元谷相干的操控将为谷电子学应用开辟新的研究方向。

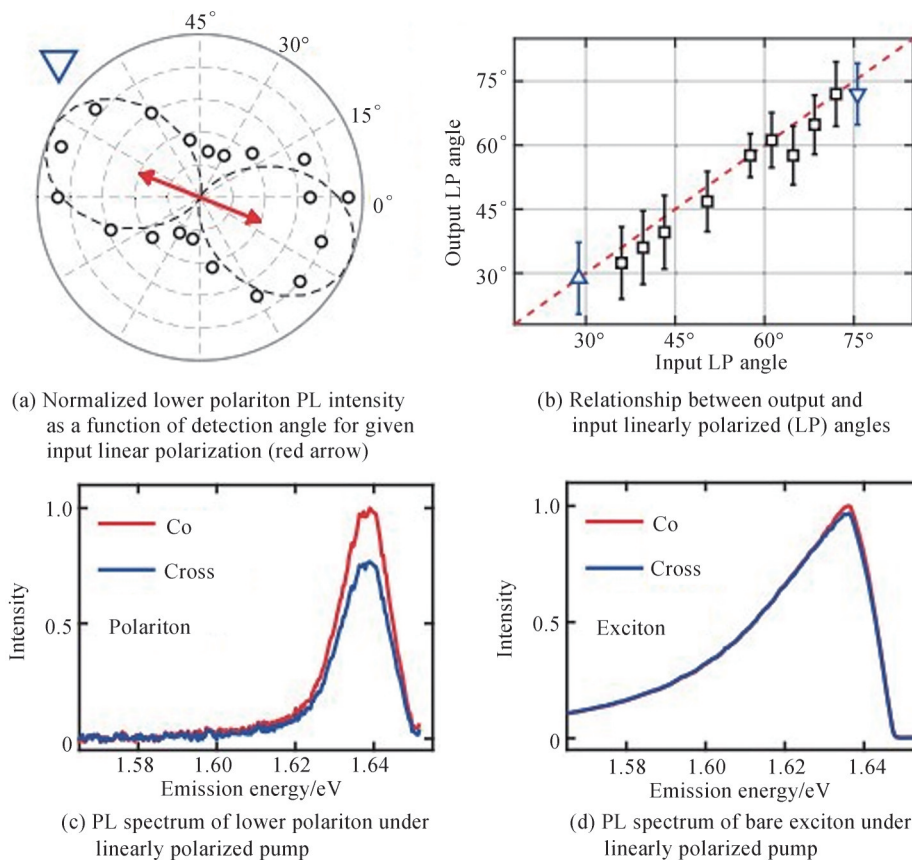


图10 WSe₂-DBR微腔中激子-极化激元的室温谷相干性^[85]
Fig.10 Room-temperature valley coherence of the exciton-polaritons in a WSe₂-DBR microcavity^[85]

综上,二维TMDs材料中谷激子-极化激元的成功观测(见表2)以及对其谷极化和谷相干的操纵,表明了激子-极化激元在谷自由度调控方面的潜力,为开发具有谷自旋特性的激光光源和光开关等低功耗、高响应速率的光电子能谷器件提供了一个全新的研究平台。

表2 二维TMDs中的谷激子-极化激元
Table 2 Valley exciton-polaritons in two-dimensional TMDs

Material	Cavity	Valley exciton-polariton	Rabi splitting /meV	Temperature	Pump source	Ref.
MoS ₂	DBR	Valley polarization (29.5%)	39	8 K	CW laser	[74]
WS ₂	Ag mirror	Valley polarization (27%)	70~100	RT	CW laser	[78]
MoSe ₂	DBR	Valley polarization (>90%)	---	5 K	CW laser	[79]
MoSe ₂	DBR	Valley coherence (>90%)	---	5 K	CW laser	[79]
WSe ₂	DBR	Valley coherence (9%)	11.4	RT	fs laser	[85]

3 二维TMDs中激子-极化激元的玻色爱因斯坦凝聚

激子-极化激元是凝聚态物理体系中观察玻色-爱因斯坦凝聚(BEC)现象的优良候选体系,因其具有低有效质量和强非线性特性,非常适合研究高温下的BEC现象^[24, 86-88]。这种将量子物理现象带到宏观尺度的行为,为开发新型全光器件打开了全新的大门,例如基于激子-极化激元的玻色-爱因斯坦凝聚体因其不受粒子数反转条件限制,在实现超低阈值激光光源上具有巨大的应用前景。

2018年,WALDHERR M等报道了在4.2 K下基于二维TMDs激子-极化激元的玻色爱因斯坦凝聚态^[89]。通过在DBR/Au微腔中嵌入GaAs量子阱和单层MoSe₂作为增益介质,量子阱和TMDs中的激子和腔模式之间发生集体强耦合,形成空间限域的杂化激子-极化激元模式,其在动量空间不发生色散。随着泵浦功率的增加,所有粒子逐渐凝聚到下极化激元杂化态,并伴随着荧光强度的非线性增强、光谱线宽的窄化和峰位的明显蓝移(图11(a))。从图11(b)、(c)可以看到,在泵浦能量低至4.8 pJ/pulse时发生阈值激射行为,阈值附近光谱线宽从2.1 meV快速下降到0.7 meV。在凝聚阈值以下,由于杂化极化激元与激子之间的排斥相互作用,杂化模式明显蓝移。而超过阈值时,模式仍发生轻微蓝移(极化激元凝聚态与经典激光模式的一个重要区别)。这些特征都清晰地表明了BEC的出现。并且由于激子-极化激元继承了激子的谷极化特性,加上BEC的弛豫速度更快,导致在阈值之上具有更高的谷极化度(17.9%),这表明BEC同样保持了激子的自旋能谷锁定机制(图11(d))。

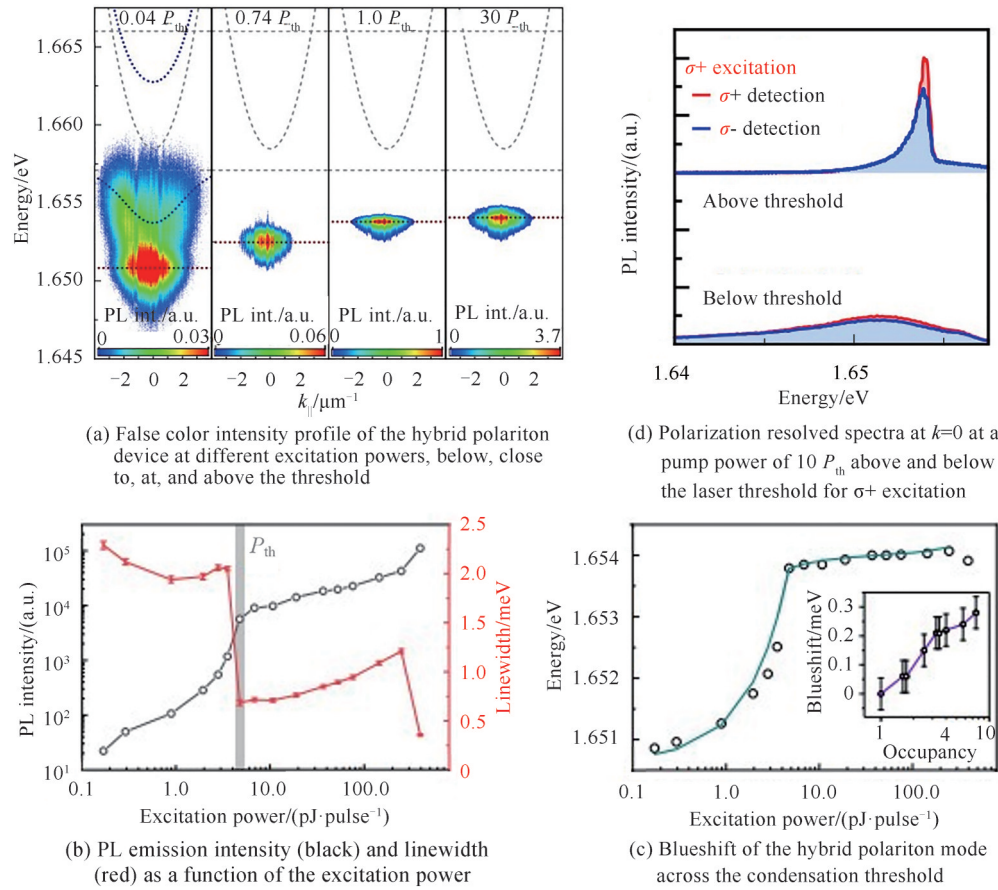


图11 MoSe₂-GaAs微腔中的玻色子凝聚^[89]

Fig.11 Observation of bosonic condensation in a hybrid monolayer MoSe₂-GaAs microcavity^[89]

为进一步对TMDs激子-极化激元玻色爱因斯坦凝聚态性质开展研究,2021年该课题组的ANTON-SOLANAS C等对MoSe₂-DBR微腔中激子-极化激元BEC的空间相干性进行了探索^[90]。同样通过非线性阈值,线宽变窄以及发射能量在阈值上的蓝移等特征,证明了极化激元玻色爱因斯坦凝聚态的出现(图12(a))。空间扩展相位相干性是宏观凝聚态的重要特征。如图12(b)所示,低于阈值时几乎不存在空间干涉条纹,表明没有形成宏观相干;而高于阈值时干涉条纹的出现(空间扩展至4 μm)表明空间相干凝聚态的产生。提取干涉图的一阶相干函数($g^{(1)}(\Delta t)$),得到相干时间为 360 ± 10 fs,与极化激元寿命在同一量级^[36, 91](图12(c))。该工作进一步表明二维TMDs体系中激子-极化激元玻色爱因斯坦凝聚现象的成功实现。

由于声子会干扰激子-极化激元玻色爱因斯坦凝聚态的形成,所以其需要在极低温度下才易实现。2021年,ZHAN Jiaxin等在WS₂-DBR微腔中实现了室温下的激子-极化激元激光^[92]。如图13(a),由于系统的强耦合,在足够高的粒子密度下,激子-极化激元通过受激散射在动量空间凝聚成单个宏观量子态,出现

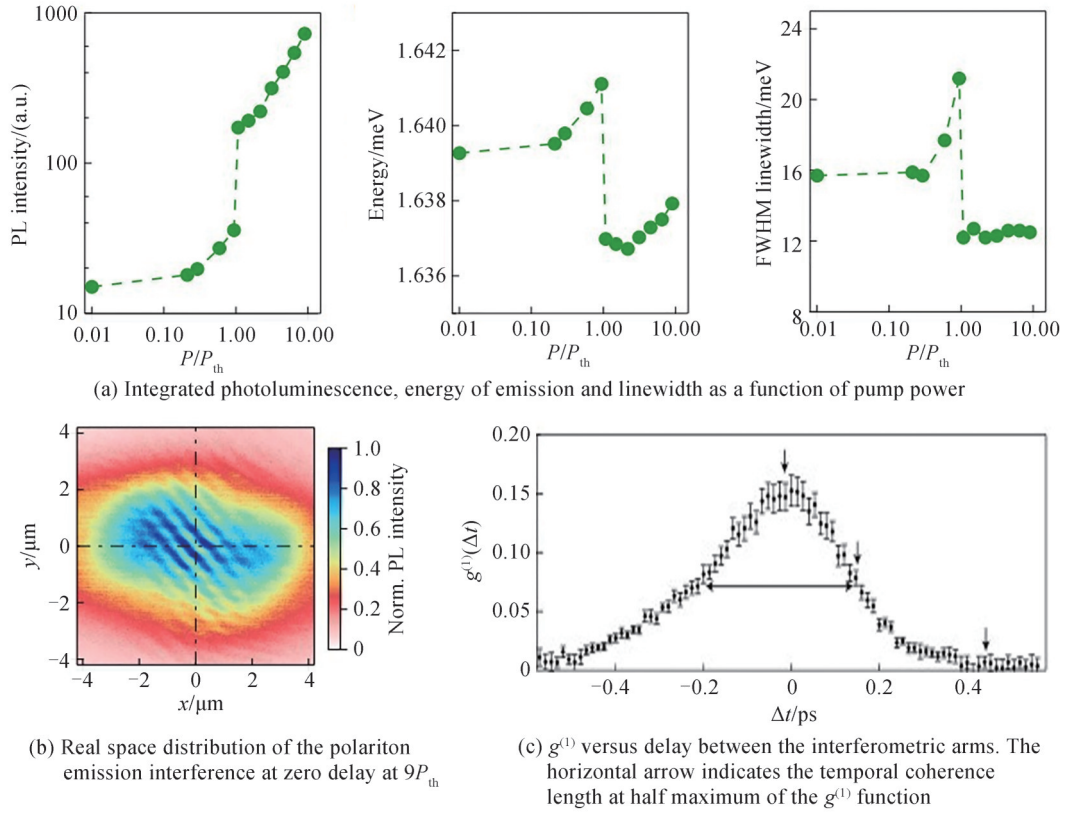


图 12 MoSe₂-DBR 微腔中激子-极化激元的玻色爱因斯坦凝聚^[90]
 Fig.12 Bosonic condensation of exciton-polaritons in a MoSe₂-DBR microcavity^[90]

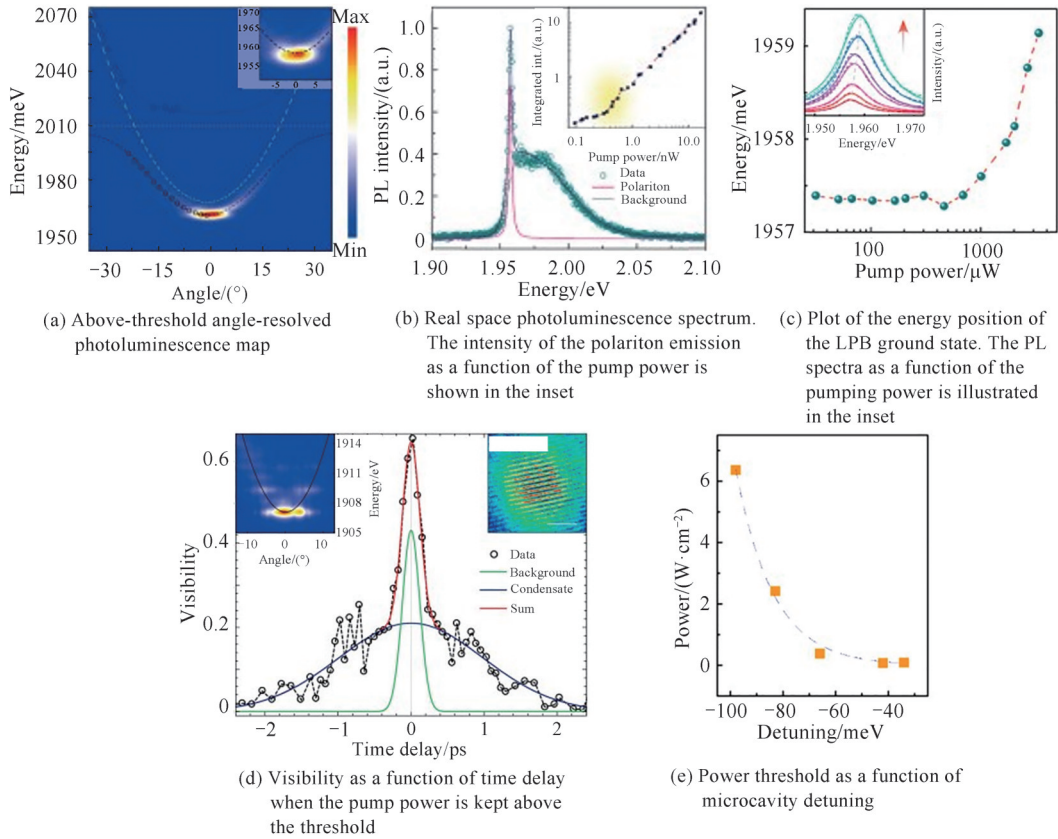


图 13 室温下 WS₂-DBR 微腔中的超低阈值激子-极化激元凝聚^[92]
 Fig.13 Ultralow threshold polariton condensate in a WS₂-DBR microcavity at room temperature^[92]

激子-极化激元激射现象。激射阈值约为 0.06 W/cm^2 , 比传统量子阱材料的激射阈值低几个数量级^[24, 93] (图 13(b)、(c))。空间相干特性的研究进一步表明室温下激子-极化激元玻色爱因斯坦凝聚现象的实现(图 13(d))。通过调节微腔中模式之间的失谐程度, 可进一步调控激射阈值, 失谐越小激射阈值也相应降低(图 13(e))。该工作为在室温下实现超低阈值极化激元激光奠定了理论基础。

综上, 从证实 2D TMDs 在低温下存在激子-极化激元的玻色爱因斯坦凝聚到目前实现室温下的激子-极化激元激光(如表 3), 这些为实现可控的相干光输出带来了可能, 并且在构筑光子学集成系统上具有很大的应用潜力。

表 3 二维 TMDs 中的激子-极化激元激光
Table 3 Polariton lasers in two-dimensional TMDs

Material	Q	Condensation threshold	Linewidth	Spatial coherence	Coherence time	Nonlinear threshold	Blueshift above threshold	T/K	Pump source	Ref.
Monolayer MoSe ₂ / GaAs + DBR/ Au film Cavity	650	4.8 pJ/pulse (~0.39 mW)	0.87 nm (0.7 meV)	Not shown	Not shown	✓	✓	4.2	pulsed laser	[89]
Monolayer MoSe ₂ + DBR Cavity	500	14 mW (~ $3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$)	~14.7 nm (12 meV)	✓	~360 fs	✓	✓	4	pulsed laser	[90]
Monolayer WS ₂ + DBR Cavity	2000	0.5 nW (0.06 W/cm ²)	~3 nm (2.4 meV)	✓	~1.65 ps	✓	✓	RT	CW laser	[92]

4 总结与展望

本文以二维 TMDs 中的激子-极化激元为出发点, 对近年来有关研究成果进行了总结, 具体包括不同二维 TMDs 材料与微腔体系中激子-极化激元的产生及其影响因素, 谷极化激子-极化激元的实现与操控, 以及激子-极化激元中的玻色爱因斯坦凝聚现象。这些研究成果表明二维 TMDs 材料在凝聚态多体物理、超低阈值激光光源和谷电子学应用上具有巨大的潜力。

然而, 关于二维 TMDs 材料中激子-极化激元的产生特别是其玻色爱因斯坦凝聚方面的研究还处于初期阶段, 对激子-极化激元发生玻色爱因斯坦凝聚的内在机理及其在超低阈值激光光源上的实际应用仍存在诸多关键科学与技术问题待解决。首先, 玻色爱因斯坦凝聚本身是一种集体运动, 对玻色爱因斯坦凝聚产生的条件及其基本规律的理解一直是凝聚态物理中的重要问题。对于二维材料, 其中激子-极化激元发生玻色爱因斯坦凝聚的机制是什么(涉及到哪些准粒子的散射及其散射过程如何演化等), 以及它与其他半导体材料中的玻色爱因斯坦凝聚有何异同等问题有待进一步深入研究与解决。其次, 二维 TMDs 材料具有很大的激子束缚能(0.5~1 eV)^[37-43], 一方面这使其即使在较低激发密度下也易产生各种激子复合体比如三激子、双激子等; 另一方面当激发密度逐渐增加时, 激子-激子湮灭也较易发生。这两方面都会影响激子的密度与寿命, 进而影响到激子-极化激元的形成及其凝聚。而实验上已在室温下观察到了二维材料中的激子-极化激元凝聚, 那么激子复合体在其中扮演一个什么样的角色, 它与极化激元凝聚体之间是一种竞争还是协同关系等问题也有待解决。另外, 二维 TMDs 激子-极化激元激光的研究还处于初期, 实现具有实际应用价值的二维 TMDs 激子-极化激元激光也有许多问题待解决: 首先, 高质量强发光效率二维增益介质的制备一直是个难题, 这是实现实际可用的二维极化激元激光器需解决的首要问题, 未来可通过优化生长方法、掺杂、能带工程(如构筑 type-I 型能带结构)以及发掘新型二维增益介质等多种方式来尽可能解决这一难题; 其次, 高品质因子光学谐振腔的构筑也不可或缺, 尤其对于二维激子-极化激元量子态的产生, 其要求光与物质相互作用进入强耦合区域, 这使得对微腔品质因子的要求更加严格, 它对光子在谐振腔内的寿命及二维材料与微腔的耦合效率至关重要, 如何制备高品质的光学谐振微腔也是有待攻克的一个技术难题; 与此同时, 如何实现二维增益介质与光学谐振腔的有效耦合, 以尽可能不影响增益介质的发光效率以及谐振腔的品

质因子,也是实现二维激子-极化激元激光器有待解决的一个重要科学问题。此外,目前发光效率较好的TMDs材料其发光波段均集中在可见区,寻找与硅基波段匹配且发光效率好的新型二维材料或异质结构以实现真正意义上的可集成硅基光源将具有重要的研究价值,基于TMDs范德华异质结的层间激子被认为是满足这些要求的一种潜在研究体系^[94],它具有层内激子所不具备的一些优势,比如:1)其发光波段偏红外区域,更接近硅基通信波段,有利于硅基集成;2)具有固有电偶极矩,便于电调控,有利于发展电泵浦光源;3)固有偶极矩之间的排斥力使激子复合体不易产生;4)具有较高激子束缚能的同时也有较长的激子寿命,有利于玻色爱因斯坦凝聚的形成。层间激子的这些优势使其在硅基可集成低阈值光源上具有很大潜力,近期也有工作报道了基于层间激子的激光光源^[95,96]及其玻色凝聚^[97]。最后,值得说明的是,虽然基于二维材料的激光光源具有小型化优势,但由于介质微腔或其他光学谐振腔的引入,其尺寸很难突破衍射极限,等离激元被认为是突破衍射极限缩小器件尺寸的有效方案,但金属等离子微腔的一个很大缺点是损耗大,因此除了前面讨论的设计优化光学微腔,发展低损耗等离子体微腔也将是未来实现小尺寸激光光源的一个重要方向。

总之,实现基于二维材料的高性能激子-极化激元激光这一目标仍需要对材料性质、微腔结构和器件工艺等多方面工作进行深入探索与研究,期待在不远的将来涌现出更多突破性的成果。

参考文献

- [1] MOORE G E. Cramming more components onto integrated circuits[J]. IEEE Solid-State Circuits Society Newsletter, 1965, 38(8): 33-35.
- [2] MOORE G E. Progress in digital integrated electronics[J]. IEEE Solid-State Circuits Society Newsletter, 1975, 21: 11-13.
- [3] THOMPSON S E, PARTHASARATHY S. Moore's law: the future of Si microelectronics[J]. Materials Today, 2006, 9(6): 20-25.
- [4] THEIS T N, WONG H S P. The end of Moore's law: a new beginning for information technology[J]. Computing in Science & Engineering, 2016, 19(2): 41-50.
- [5] ZHOU Zhiping, TU Zhijuan, LI Tiantian, et al. Silicon photonics for advanced optical interconnections[J]. Journal of Lightwave Technology, 2015, 33(4): 928-933.
- [6] ZHOU Zhiping, YIN Bing, MICHEL J. Corrigendum: On-chip light sources for silicon photonics[J]. Light: Science & Applications, 2016, 5(4): e16098.
- [7] ATABAKI A H, MOAZENI S, PAVANELLO F, et al. Integrating photonics with silicon nanoelectronics for the next generation of systems on a chip[J]. Nature, 2018, 556(7701): 349-354.
- [8] MILLER D. Device requirements for optical interconnects to silicon chips[J]. Proceedings of the IEEE, 2009, 97(7): 1166-1185.
- [9] PAUZAUSKIE P J, YANG Peidong. Nanowire photonics[J]. Materials Today, 2006, 9(10): 36-45.
- [10] EMTSEV K V, BOSTWICK A, HORN K, et al. Towards wafer-size graphene layers by atmospheric pressure graphitization of silicon carbide[J]. Nature Materials, 2009, 8(3): 203-207.
- [11] FRANKLIN A D. Nanomaterials in transistors: From high-performance to thin-film applications[J]. Science, 2015, 349(6249): aab2750.
- [12] LIU Zhicheng, SUN Hao, YIN Leijun, et al. Single crystal erbium compound nanowires as high gain material for on-chip light source applications[J]. Frontiers of Optoelectronics, 2016, 9(2): 312-317.
- [13] ZHOU Peiqi, WANG Xingjun, HE Yandong, et al. A high-power, high-efficiency hybrid silicon-based erbium silicate-silicon nitride waveguide laser[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2020, 56(2): 1100111.
- [14] ZHOU Peiqi, WANG Xingjun, HE Yandong. A sub-kHz narrow-linewidth, and hundred-mW high-output-power silicon-based Er silicate laser with hybrid pump and signal co-resonant cavity[J]. IEEE Photonics Journal, 2020, 12(1): 1500212.
- [15] HUANG Kun. Lattice vibrations and optical waves in ionic crystals[J]. Nature, 1951, 167: 779-780.
- [16] HENRY C H, HOPFIELD J J. Raman scattering by polaritons[J]. Physical Review Letters, 1965, 15(25): 964-966.
- [17] STINSON H T, WU J S, JIANG B Y, et al. Infrared nanospectroscopy and imaging of collective superfluid excitations in anisotropic superconductors[J]. Physical Review B, 2014, 90(1): 014502.
- [18] BASOV D N, FOGLER M M, ABAJO F J G. Polaritons in van der Waals materials[J]. Science, 2016, 354(6309): aag1992.
- [19] LOW T, CHAVES A, CALDWELL J D, et al. Polaritons in layered two-dimensional materials[J]. Nature Materials, 2017, 16(2): 182-194.
- [20] WEISBUCH C, NISHIOKA M, ISHIKAWA A, et al. Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity[J]. Physical Review Letters, 1992, 69(23): 3314-3317.

- [21] IMAMOGLU A, RAM R J, PAU S, et al. Nonequilibrium condensates and lasers without inversion: Exciton-polariton lasers[J]. *Physical Review A*, 1996, 53(6): 4250-4253.
- [22] SAVVIDIS P G, BAUMBERG J J, STEVENSON R M, et al. Angle-resonant stimulated polariton amplifier[J]. *Physical Review Letters*, 2000, 84(7): 1547-1550.
- [23] DENG Hui, WEIHS G, SANTORI C, et al. Condensation of semiconductor microcavity exciton polaritons[J]. *Science*, 2002, 298(5591): 199-202.
- [24] KASPRZAK J, RICHARD M, KUNDERMANN S, et al. Bose-Einstein condensation of exciton polaritons[J]. *Nature*, 2006, 443(7110): 409-414.
- [25] CHRISTOPOULOS S, BALDASSARRI HOGER VON HOGERTHAL G, GRUNDY A J D, et al. Room-temperature polariton lasing in semiconductor microcavities[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 98(12): 126405.
- [26] AMO A, SANVITTO D, LAUSSY F P, et al. Collective fluid dynamics of a polariton condensate in a semiconductor microcavity[J]. *Nature*, 2009, 457(7227): 291-295.
- [27] RAMEZANI M, HALPIN A, FERNÁNDEZ-DOMÍNGUEZ A I, et al. Plasmon-exciton-polariton lasing[J]. *Optica*, 2016, 4(1): 31-37.
- [28] LIDZEY D G, BRADLEY D D C, SKOLNICK M S, et al. Strong exciton-photon coupling in anorganic semiconductor microcavity[J]. *Nature*, 1998, 395(6697): 53-55.
- [29] TANG Ji, ZHANG Jian, LV Yuanchao, et al. Room temperature exciton-polariton Bose-Einstein condensation in organic single-crystal microribbon cavities[J]. *Nature Communications*, 2021, 12(1): 1-8.
- [30] CHICHIBU S F, SOTA T, CANTWELL G, et al. Polarized photoreflectance spectra of excitonic polaritons in a ZnO single crystal[J]. *Journal of Applied Physics*, 2003, 93(1): 756-758.
- [31] KENA-COHEN S, FORREST S R. Room-temperature polariton lasing in an organic single-crystal microcavity[J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(6): 371-375.
- [32] BHATTACHARYA P, FROST T, DESHPANDE S, et al. Room temperature electrically injected polariton laser[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112(23): 236802.
- [33] SHIMA K, FURUSAWA K, CHICHIBU S F. Room-temperature cavity-polaritons in planar ZnO microcavities fabricated by a top-down process[J]. *Applied Physics Letters*, 2020, 117(7): 071103.
- [34] AGRANOVICH V M, LITINSKAIA M, LIDZEY D G. Cavity polaritons in microcavities containing disordered organic semiconductors[J]. *Physical Review B*, 2003, 67(8): 085311.
- [35] MICHETTI P, ROCCA G C L. Polariton states in disordered organic microcavities[J]. *Physical Review B*, 2005, 71(11): 115320.
- [36] DASKALAKIS K S, MAIER S A, KENA-COHEN S. Spatial coherence and stability in a disordered organic polariton condensate[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115(3): 035301.
- [37] WANG Qinghua, KALANTAR-ZADEH K, KIS A, et al. Electronics and optoelectronics of two-dimensional transition metal dichalcogenides[J]. *Nature Nanotechnology*, 2012, 7(11): 699-712.
- [38] SPLENDIANI A, SUN Liang, ZHANG Yuanbo, et al. Emerging photoluminescence in monolayer MoS₂[J]. *Nano Letters*, 2010, 10(4): 1271-1275.
- [39] MAK K F, LEE C, HONE J, et al. Atomically thin MoS₂: a new direct-gap semiconductor[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(13): 136805.
- [40] UGEDA M M, BRADLEY A J, SHI Sufei, et al. Giant bandgap renormalization and excitonic effects in a monolayer transition metal dichalcogenide semiconductor[J]. *Nature Materials*, 2014, 13(12): 1091-1095.
- [41] CHERNIKOV A, BERKELBACH T C, HILL H M, et al. Exciton binding energy and nonhydrogenic Rydberg series in monolayer WS₂[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(7): 076802.
- [42] YE Ziliang, CAO Ting, O'BRIEN K, et al. Probing excitonic dark states in single-layer tungsten disulphide[J]. *Nature*, 2014, 513(7517): 214-218.
- [43] HE Keliang, KUMAR N, ZHAO Liang, et al. Tightly bound excitons in monolayer WSe₂[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(2): 026803.
- [44] LIU Yuan, GUO Jian, ZHU Enbo, et al. Approaching the Schottky-Mott limit in van der Waals metal-semiconductor junctions[J]. *Nature*, 2018, 557(7707): 696-700.
- [45] LIU Yuan, HUANG Yu, DUAN Xiangfeng. Van der Waals integration before and beyond two-dimensional materials[J]. *Nature*, 2019, 567(7748): 323-333.
- [46] XIAO Di, LIU Guibin, FENG Wanxiang, et al. Coupled spin and valley physics in monolayers of MoS₂ and other group-VI dichalcogenides[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108(19): 196802.
- [47] XU Xiaodong, YAO Wang, XIAO Di, et al. Spin and pseudospins in layered transition metal dichalcogenides[J]. *Nature Physics*, 2014, 10(5): 343-350.
- [48] RIVERA P, SEYLER K L, YU Hongyi, et al. Valley-polarized exciton dynamics in a 2D semiconductor heterostructure[J]. *Science*, 2016, 351(6274): 688-691.

- [49] DENG Hui, HAUG H, YAMAMOTO Y. Exciton-polariton Bose-Einstein condensation [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2010, 82(2): 1489-1537.
- [50] LAGOUDAKIS K G, MANNI F, PIETKA B, et al. Probing the dynamics of spontaneous quantum vortices in polariton superfluids [J]. *Physical Review Letters*, 2011, 106(11): 115301.
- [51] AMO A, PIGEON S, SANVITTO D, et al. Polariton superfluids reveal quantum hydrodynamic solitons [J]. *Science*, 2011, 332(6034): 1167-1169.
- [52] KUZNETSOV A S, MACHADO D H O, BIERMANN K, et al. Electrically driven microcavity exciton-polariton optomechanics at 20 GHz [J]. *Physical Review X*, 2021, 11(2): 021020.
- [53] LIU Xiaoze, GALFSKY T, SUN Zheng, et al. Strong light - matter coupling in two-dimensional atomic crystals [J]. *Nature Photonics*, 2014, 9(1): 30-34.
- [54] SAVONA V, ANDREANICB L C, SCHWENDIMANN P, et al. Quantum well excitons in semiconductor microcavities: Unified treatment of weak and strong coupling regimes [J]. *Solid State Communications*, 1995, 93(9): 733-739.
- [55] KHITROVA G, GIBBS H M, KIRA M, et al. Vacuum Rabi splitting in semiconductors [J]. *Nature physics*, 2006, 2(2): 81-90.
- [56] LERARIO G, CANNAVALE A, BALLARINI D, et al. Room temperature Bloch surface wave polaritons [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(7): 2068-2071.
- [57] PIROTTA S, PATRINI M, LISCIDINI M, et al. Strong coupling between excitons in organic semiconductors and Bloch surface waves [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(5): 051111.
- [58] LERARIO G, BALLARINI D, FIERAMOSCA A, et al. High-speed flow of interacting organic polaritons [J]. *Light: Science & Applications*, 2017, 6(2): e16212.
- [59] MAK K F, SHAN Jie. Photonics and optoelectronics of 2D semiconductor transition metal dichalcogenides [J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(4): 216-226.
- [60] SHAHNAZARYAN V, IORSH I, SHELYKH I A, et al. Exciton-exciton interaction in transition-metal dichalcogenide monolayers [J]. *Physical Review B*, 2017, 96(11): 115409.
- [61] BARACHATI F, FIERAMOSCA A, HAFEZIAN S, et al. Interacting polariton fluids in a monolayer of tungsten disulfide [J]. *Nature Nanotechnology*, 2018, 13(10): 906-909.
- [62] RAJA A, WALDECKER L, ZIPFEL J, et al. Dielectric disorder in two-dimensional materials [J]. *Nature Nanotechnology*, 2019, 14(9): 832-837.
- [63] ZIPFEL J, KULIG M, PEREA-CAUSIN R, et al. Exciton diffusion in monolayer semiconductors with suppressed disorder [J]. *Physical Review B*, 2020, 101(11): 115430.
- [64] WURDACK M, ESTRECHO E, TODD S, et al. Motional narrowing, ballistic transport, and trapping of room-temperature exciton polaritons in an atomically-thin semiconductor [J]. *Nature Communications*, 2021, 12(1): 1-8.
- [65] LACKNER L, DUSEL M, EGOROV O A, et al. Tunable exciton-polaritons emerging from WS₂ monolayer excitons in a photonic lattice at room temperature [J]. *Nature Communications*, 2021, 12(1): 1-6.
- [66] LIU Xiaoze, BAO Wei, LI Quanwei, et al. Control of coherently coupled exciton polaritons in monolayer tungsten disulphide [J]. *Physical Review Letters*, 2017, 119(2): 027403.
- [67] ZHANG Long, GOGNA R, BURG W, et al. Photonic-crystal exciton-polaritons in monolayer semiconductors [J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 1-8.
- [68] TORMA P, BARNES W L. Strong coupling between surface plasmon polaritons and emitters: a review [J]. *Reports on Progress in Physics*, 2015, 78(1): 013901.
- [69] BARANOV D G, WERSALL M, CUADRA J, et al. Novel nanostructures and materials for strong light - matter interactions [J]. *ACS Photonics*, 2017, 5(1): 24-42.
- [70] RUDIN S, REINECKE T L. Temperature-dependent exciton linewidths in semiconductor quantum wells [J]. *Physical Review B*, 1990, 41(5): 3017-3027.
- [71] SELIG M, BERGHAUSER G, RAJA A, et al. Excitonic linewidth and coherence lifetime in monolayer transition metal dichalcogenides [J]. *Nature Communications*, 2016, 7(1): 1-6.
- [72] LI Yilei, CHERNIKOV A, ZHANG Xian, et al. Measurement of the optical dielectric function of monolayer transition-metal dichalcogenides: MoS₂, MoSe₂, WS₂, and WSe₂ [J]. *Physical Review B*, 2014, 90(20): 205422.
- [73] GU Jie, CHAKRABORTY B, KHATONIAR M, et al. A room-temperature polariton light-emitting diode based on monolayer WS₂ [J]. *Nature Nanotechnology*, 2019, 14(11): 1024-1028.
- [74] CHEN Yenjiong, CAIN J D, STANEV T K, et al. Valley-polarized exciton - polaritons in a monolayer semiconductor [J]. *Nature Photonics*, 2017, 11(7): 431-435.
- [75] MAK K F, HE Keliang, SHAN Jie, et al. Control of valley polarization in monolayer MoS₂ by optical helicity [J]. *Nature Nanotechnology*, 2012, 7(8): 494-498.
- [76] KIOSEOGLU G, HANBICKI A T, CURRIE M, et al. Valley polarization and intervalley scattering in monolayer MoS₂ [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 101(22): 221907.

- [77] ZENG Hualing, DAI Junfeng, YAO Wang, et al. Valley polarization in MoS₂ monolayers by optical pumping[J]. Nature Nanotechnology, 2012, 7(8): 490-493.
- [78] ZHENG Sun, GuJIE, AREG Ghazaryan, et al. Optical control of room-temperature valley polaritons [J]. Nature Photonics, 2017, 11(8): 491-496.
- [79] LUNDT N, DUSANOWSKI L, SEDOV E, et al. Optical valley Hall effect for highly valley-coherent exciton-polaritons in an atomically thin semiconductor[J]. Nature Nanotechnology, 2019, 14(8): 770-775.
- [80] HANBICKI A T, KIOSEOGLU G, CURRIE M, et al. Anomalous temperature-dependent spin-valley polarization in monolayer WS₂[J]. Scientific Reports, 2016, 6(1): 1-9.
- [81] DUFFERWIEL S, LYONS T P, SOLNYSHKOV D D, et al. Valley-addressable polaritons in atomically thin semiconductors[J]. Nature Photonics, 2017, 11(8): 497-501.
- [82] BLEU O, SOLNYSHKOV D D, MALPUECH G. Optical valley Hall effect based on transitional metal dichalcogenide cavity polaritons[J]. Physical Review B, 2017, 96(16): 165432.
- [83] MAIALLE M Z, DE ANDRADA E SILVA A, SHAM L J. Exciton spin dynamics in quantum wells [J]. Physical Review B, 1993, 47(23): 15776-15788.
- [84] BARANOWSKI M, SURRENTE A, MAUDE D K, et al. Dark excitons and the elusive valley polarization in transition metal dichalcogenides[J]. 2D Materials, 2017, 4(2): 025016.
- [85] QIU L, CHAKRABORTY C, DHARA S, et al. Room-temperature valley coherence in a polaritonic system[J]. Nature Communications, 2019, 10(1): 1-5.
- [86] BALILI R, HARTWELL V, SNOKE D, et al. Bose-Einstein condensation of microcavity polaritons in a trap [J]. Science, 2007, 316(5827): 1007-1010.
- [87] TORRES J A, KANER R B. Graphene synthesis: Graphene closer to fruition[J]. Nature Materials, 2014, 13(4): 247-252.
- [88] DASKALAKIS K S, MAIER S A, MURRAY R, et al. Nonlinear interactions in an organic polariton condensate [J]. Nature Materials, 2014, 13(3): 271-278.
- [89] WALDHERR M, LUNDT N, KLAAS M, et al. Observation of bosonic condensation in a hybrid monolayer MoSe₂-GaAs microcavity[J]. Nature Communications, 2018, 9(1): 1-6.
- [90] ANTON-SOLANAS C, WALDHERR M, KLAAS M, et al. Bosonic condensation of exciton-polaritons in an atomically thin crystal[J]. Nature Materials, 2021, 20(9): 1233-1239.
- [91] GIORG M D, RAMEZAN M, TODISCO F, et al. Interaction and coherence of a plasmon - exciton polariton condensate [J]. ACS Photonics, 2018, 5(9): 3666-3672.
- [92] ZHAO Jiaxin, SU Rui, FIERAMOSCA A, et al. Ultralow threshold polariton condensate in a monolayer semiconductor microcavity at room temperature[J]. Nano Letters, 2021, 21(7): 3331-3339.
- [93] BAJONI D, SENELLART P, WERTZ E, et al. Polariton laser using single micropillar GaAs-GaAlAs semiconductor cavities[J]. Physical Review Letters, 2008, 100(4): 047401.
- [94] JIANG Ying, CHEN Shula, ZHENG Weihao, et al. Interlayer exciton formation, relaxation, and transport in TMD van der Waals heterostructures[J]. Light: Science & Applications, 2021, 10(1): 1-29.
- [95] PAIK E Y, ZHANG L, BURG G W, et al. Interlayer exciton laser of extended spatial coherence in atomically thin heterostructures[J]. Nature, 2019, 576(7785): 80-84.
- [96] LIU Yuanda, FANG Hanlin, RASMITA A, et al. Room temperature nanocavity laser with interlayer excitons in 2D heterostructures[J]. Science Advances, 2019, 5(4): eaav4506.
- [97] WANG Zefang, RHODES D A, WATANABE K, et al. Evidence of high-temperature exciton condensation in two-dimensional atomic double layers[J]. Nature, 2019, 574(7776): 76-80.

Research Progress on Exciton-polaritons in Two-dimensional Transition Metal Chalcogenides (Invited)

XU Zheyuan^{1,3,4}, JIANG Ying^{2,3,4}, PAN Anlian^{1,3,4}

(1 College of Materials Science and Engineering, Hunan University, Changsha 410082, China)

(2 School of Physics & Electronics, Hunan University, Changsha 410082, China)

(3 Key Laboratory for Micro-Nano Physics and Technology of Hunan Province, Changsha 410082, China)

(4 Hunan Innovation Research Institute of Optoelectronic Integration, Changsha 410082, China)

Abstract: The exciton-polariton is a kind of boson quasiparticle that is formed by the strong coupling

between cavity photons and excitons in semiconductors. The exciton-polariton behaves as a hybrid state of half-light and half-matter and possesses the properties of strong light-matter interaction, low effective mass, large group velocity, long transmission distance, and can be easily controlled. Therefore, it is beneficial to the research and development of new-generation optoelectronic devices such as exciton-polariton lasers, LEDs, photodetectors, spin storage elements, and optical switches. On the other hand, because of the boson properties, when the density of excited particles reaches a certain level, exciton-polaritons can condense into a single macroscopic quantum state (Bose-Einstein condensate) through stimulated scattering. This single macroscopic quantum state bypasses the limit of the particle inversion so that an ultra-low threshold laser can be achieved. Therefore, exciton-polariton has attracted extensive attention of researchers.

Previous research mainly focused on the traditional inorganic semiconductor quantum well microcavity systems, and the observation condition requiring low temperature greatly limits its applications. The Two-dimensional Transition Metal Dichalcogenides (TMDs) which emerge in recent years have direct bandgap, strong dipole oscillation strength, large exciton binding energy, van der Waals integration and many other advantages, making them show great potential in exploring the exciton-polariton phenomenon. Furthermore, combining with the valley polarized properties of TMDs, valley-polarized exciton-polariton can be realized to promote the valleytronic applications such as optical spin switches and valley polarized bistable devices.

In this review, we systematically discussed the exciton-polariton in two-dimensional TMDs from three aspects. First, the research progress of exciton-polariton in two-dimensional TMDs was discussed. The properties of exciton-polariton in TMDs such as strong nonlinearity, long-distance propagation, and little effect from the dielectric disorder were described. Then the influence of the cavity structure (tunable open Fabry-Pérot cavity and a 3D photonic crystal structure) on the properties of exciton-polariton was discussed. The realization of electrically pumped exciton-polariton was also described in this section. Second, the realization of valley-polarized exciton-polariton in two-dimensional TMDs was reviewed. This section shows that the exciton-polariton in two-dimensional TMDs inherits the valley characteristics of the TMDs excitons. And due to the existence of more relaxation channels, the exciton-polariton has higher degree of valley polarization and valley coherence than those of exciton. By regulating the excitation wavelength and temperature, the degree of valley polarization can be achieved with a value more than 90%. Third, the Bose Einstein condensation of exciton-polariton in two-dimensional TMDs was discussed, including the earliest observation of Bose Einstein condensation of exciton-polariton in 2D TMDs at extremely low temperature and the recent realization of low-threshold exciton-polariton laser at room temperature. At the end of this review, we summarized and analyzed the key scientific and technical issues that need to be solved for the practical applications of two-dimensional TMDs exciton-polariton lasers, such as the understanding of the mechanism of Bose-Einstein condensation, the clarifying of the influence of exciton complex on exciton-polariton condensation, the preparation of two-dimensional gain medium with high-quality and strong emission efficiency, and the construction of high-quality optical resonators as well as the realization of effective coupling between the 2D gain medium and the optical resonator. Finally, we give a brief perspective of the development of exciton-polariton lasers based on 2D TMDs materials.

Key words: Low-dimensional semiconductor light-matter interaction; Exciton-polariton; 2D TMDs; Valleytronics; Bose-Einstein condensation

OCIS Codes: 140.3948; 160.4236; 160.6000; 220.4241; 250.5960