

文章编号: 1001-3806(2024)06-0876-08

## 2 维材料中极化激元激光的研究进展

张睿洋<sup>1</sup>, 保文睿<sup>1</sup>, 杜静<sup>2</sup>, 王卫<sup>1\*</sup>

(1. 四川大学 物理学院, 成都 610065, 中国; 2. 四川大学 原子与分子物理研究所, 成都 610065, 中国)

**摘要:** 极化激元激光是一种新型激光, 以半导体中激子-极化激元的玻色-爱因斯坦凝聚 (BEC) 的相干性实现超低阈值激光。不同于传统 3 维有机无机材料, 2 维过渡金属硫族化合物与 2 维钙钛矿以其高激子结合能、高振子强度、直接带隙、范德华特性、谷极化特性, 有利于实现激子与腔模式的强耦合以及激子-极化激元的 BEC, 在极化激元激光的进一步发展中表现出巨大的潜力。介绍了 2 维材料中的极化激元激光的原理和进展, 分别从 2 维过渡金属硫族化合物和 2 维钙钛矿的特性出发, 重点综述了其中激子与腔模式的强耦合, 极化激元的相干性的调控以及 BEC 的实现, 并对 2 维材料中的极化激元激光的未来发展进行了展望。

**关键词:** 激光技术; 极化激元激光; 强耦合; 2 维过渡金属硫族化合物; 2 维钙钛矿; 玻色-爱因斯坦凝聚

中图分类号: O43

文献标志码: A

doi:10.7510/jgjs.issn.1001-3806.2024.06.013

## Research progress on polariton lasing in 2-D materials

ZHANG Ruiyang<sup>1</sup>, BAO Wenrui<sup>1</sup>, DU Jing<sup>2</sup>, WANG Wei<sup>1\*</sup>

(1. College of Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, China; 2. Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu 610065 China)

**Abstract:** Polariton lasing is a new type of lasing that realizes ultra-low threshold lasing with the coherence of Bose-Einstein condensation (BEC) of exciton-polariton in semiconductors. Unlike conventional 3-D organic and inorganic materials, 2-D transition metal dichalcogenides and 2-D perovskite show great potential in the further development of polariton lasing due to their high exciton binding energies, high oscillator strengths, direct band gaps, van der Waals properties, and valley polarization properties, which are conducive to the realization of strong coupling of exciton and cavity modes and BEC of exciton-polariton. In this review, the principle and progress of polariton lasing in 2-D transition metal chalcogenides and perovskite were mainly focused on, starting with development of strong coupling between exciton and cavity modes. Then, the modulation of the coherence of polariton, the realization of the BEC and polariton lasing was introduced. Finally, an outlook will be given on the future development of polariton lasing in 2-D materials.

**Key words:** laser technique; polariton lasing; strong coupling; 2-D transition metal dichalcogenides; 2-D perovskite; Bose-Einstein condensation

## 0 引言

极化激元激光是一种新型激光源, 具有低能量阈值, 相干性好等特征。极化激元是强耦合下的激子和微腔中的光子形成的混合准粒子, 可以通过受激散射实现玻色-爱因斯坦凝聚 (Bose-Einstein condensation, BEC)<sup>[1-5]</sup>。BEC 本身是一种大量粒子分布于基态的量子相干宏观态。当极化激元寿命短于或相当于其能量弛豫时间, 这一分布将受非平衡效应与非凝聚的激子影响, 产生低阈值的相干激光发射<sup>[6-7]</sup>。这一特点使得极化激元激光不必同传统激光一样, 依赖于工作物

质的粒子数布居反转, 来实现光的增益放大。并且, 极化激元得益于其半光半物质的性质, 具有极小的有效质量, 通常是电子质量的  $10^{-5} \sim 10^{-4}$  倍, 其易于冷却和限制于微腔, 这对于实现高温或低密度下的 BEC 有着重要意义<sup>[1, 8]</sup>。这些优良性质或将颠覆传统激光器, 有望在低功耗光电子学、量子信息处理和非线性光学等领域有潜在的应用。

近年来, 随着对极化激元研究的不断深入, 基于各种材料的极化激元激光器开始涌现。传统的无机半导体 (GaAs) 由于其较低的激子束缚能而难以实现室温强耦合, 通常只能在低温下应用<sup>[9]</sup>, 而具有高激子束缚能的无机半导体 (GaN 和 ZnO), 则可以一定程度上克服这一困难, 实现室温极化激元激光<sup>[10-11]</sup>。具有紧密束缚的 Frenkel 激子有机半导体, 有着较大的激子结合能, 并且能够在室温下产生稳定的激子-极化激元,

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (11974254)

\* 通信作者: w.wang@scu.edu.cn

收稿日期: 2024-01-08; 修回日期: 2024-03-15

是在室温下演示极化激元激光的极具吸引力的候选材料<sup>[12-16]</sup>,其来源广泛,可以通过分子设计和器件工程来调控其光学性质,实现宽波长范围的激光发射。有机材料具有溶液可加工性、柔性、低成本等特点,可以与其它光电器件进行有效的集成和互联<sup>[17]</sup>。有机半导体极化激元激光在多模切换方面也有所研究<sup>[18]</sup>。常用的有机半导体有葱<sup>[13]</sup>、茈萘生物<sup>[12, 17]</sup>。

有多种结构可以实现极化激元激光。比如将半导体制成纳米线、纳米棒或者纳米片等,一般夹在分布式布拉格反射镜(distributed Bragg reflector, DBR)中形成光学微腔,以实现极化激元激光<sup>[10, 19-21]</sup>。这些结构各自也有不错的性质,比如与广泛研究的平面微腔相比,纳米线中的激子和光子可以被限制在完全相同的体积空间内,从而实现高效耦合<sup>[21]</sup>,而超表面可以通过改变设计,精确地控制光学共振的光谱位置和辐射寿命<sup>[22]</sup>。

然而,有机材料因为无序的电势分布而表现出强烈的局域效应,而宽禁带半导体仅适用于短波长,并且需要复杂的生长技术以匹配晶格。近年来,以石墨烯为代表的 2 维材料以其表现出的大量优异的光学、电子特性而广泛应用于光电子领域<sup>[23-26]</sup>。不过,由于石墨烯并不具有直接带隙,人们将目光转移到了过渡金属硫族化合物(transition metal chalcogenide, TMD)与钙钛矿。它们不仅在众多性质上优于传统无机有机材料,并且在由 3 维向 2 维转变时,将诞生新的性质,为未来的低阈值甚至无阈值极化激元激光带来了全新的动力。它们的玻尔半径小,有着很高的激子结合能,为激子的稳定存在提供了条件,同时,又有着高振子强度<sup>[27]</sup>,有利于实现室温下的激子-极化激元强耦合<sup>[22, 28-30]</sup>。由于它们具有范德华特性,可以无视晶格适配问题以实现极化激元激光。

本文中主要介绍 2 维 TMD 与钙钛矿这两种材料,从它们的激子与腔模式形成的强耦合机制出发,总结了两种材料技术性的突破,纵观极化激元激光的发展历程,并对极化激元激光领域的未来发展进行了展望。

## 1 过渡金属硫族化合物

TMD 是一种丰富的天然的材料,其相邻的两层由范德华力连接。其化学式为  $MX_2$ ,其中  $M$  是第六主族的过渡金属元素( $M = Mo, W$ ), $X$  是硫族元素( $X = S, Se, Te$ )。TMD 自发现其在单层极限带隙从间接带隙转变为直接带隙以来,一直是一组极具吸引力的半导体。相比于 3 维材料,直接带隙 2 维 TMD 有着更高的激子结合能(0.5 eV ~ 1.0 eV)<sup>[31-34]</sup>,并且对于部分 TMD,比如 2 维  $MoS_2$ ,其单层光致发光(photolumines-

cence, PL)较其 3 维形态有所提高。它们为研究具有新的自旋谷自由度的半导体材料中的 2 维激子提供了一个几乎理想的系统。

### 1.1 激子-极化激元中的强耦合

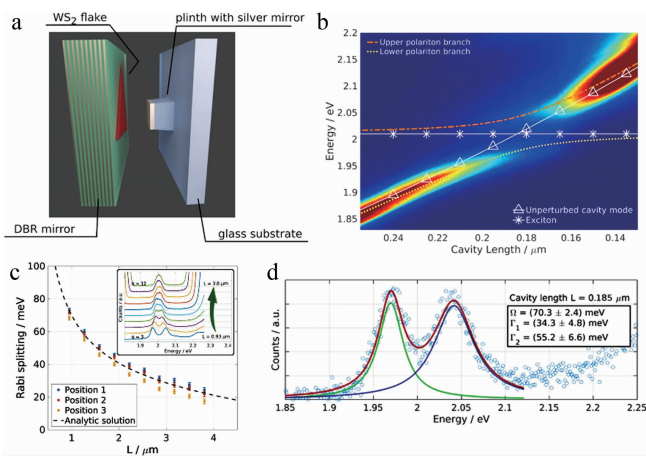
要实现极化激元激光首先要实现激子与微腔模式的强耦合,而实现强耦合的最常见方法是将工作介质嵌入两个 DBR 形成的法布里-珀罗(Fabry-Perot, F-P)光学微腔中<sup>[35-39]</sup>。当激子与电磁场之间的能量交换率高于系统的其它能量耗散率(即光学损耗和激子非辐射损耗)时,就会发生强激子-光子耦合。能量交换率通常与激子振荡强度有关,这也是 TMD 和钙钛矿成为在室温下实现强耦合的良好材料的一大原因。当满足这些条件时,系统可以用两种新的本征态来描述,分别称为上激子极化激元(upper polariton branch, UPB)和下激子极化激元(lower polariton branch, LPB)。在耦合振荡模型中,UPB、LPB 的能量<sup>[9]</sup>为:

$$E_{UPB, LPB} = (E_{ex} + E_{cav})/2 + i(\hbar\Gamma_{ex} + \hbar\Gamma_{cav})/2 \pm \sqrt{V^2 - \frac{(E_{ex} - E_{cav} + i\hbar\Gamma_{ex} - i\hbar\Gamma_{cav})^2}{4}} \quad (1)$$

式中: $\hbar$ 是约化普朗克常数; $E_{ex}$ 是激子能量; $E_{cav}$ 是腔模式能量; $\Gamma_{cav}$ 和  $\Gamma_{ex}$ 分别为腔模式和激子的半峰全宽; $V$ 为光与物质相互作用势能,而当  $E_{ex} = E_{cav}$ 时,拉比分裂能量<sup>[9]</sup>为:

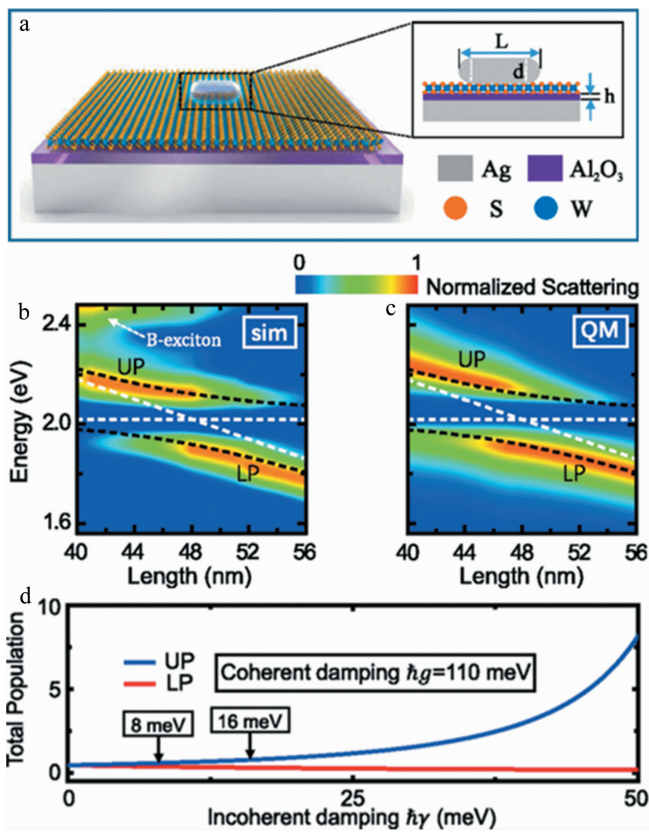
$$\hbar\Omega_{Rabi} = 2\sqrt{V^2 - \frac{(\hbar\Gamma_{ex} - \hbar\Gamma_{cav})^2}{4}} \quad (2)$$

早在 2014 年,LIU 团队在 2 维 TMD 中观测到了激子-极化激元<sup>[9]</sup>。该实验在  $MoS_2$  嵌入  $SiO_2/Si_3N_4$  的 DBR 组成的光学微腔中实现了激子与光子的强耦合,拉比分裂为  $\hbar\Omega_{Rabi} = 46 \text{ meV} \pm 3 \text{ meV}$ 。随后,其它的 TMD 也陆续实现了激子极化激元强耦合,比如,2016 年,FLATTEN 等人首次在室温下实现了激子极化激元的强耦合<sup>[40]</sup>。该团队构造了一种基于  $WS_2$  材料的开放式结构(见图 1a),微腔的一侧是 DBR,另一侧是银镜,中间夹着  $WS_2$ ;图 1b 是当保持模式数  $q = 3$  时,拉比分裂的反交叉图像;由于是开放式结构,其拉比分裂将随腔的模式数而改变(见图 1c),通过改变腔长度以改变模的数量,可以得到模的数量变化对拉比分裂能量的影响,图 1c 中纵坐标相同的 3 个点为同一模式数下的重复测量,从左至右模式数依次为  $q = 3, 4, \dots, 12$ ,当模式数增加时,拉比分裂能量减小;图 1d 中的红线为图 1b 中激子能量与腔能量相交处的垂直切面图,此时腔长  $L = 0.185 \mu\text{m}$ ,绿线和蓝线为拟合的洛伦兹峰,可以得到拉比分裂为  $\hbar\Omega_{Rabi} = (70 \pm 2) \text{ meV}$ 。

图1 WS<sub>2</sub> 中的激子-极化激元<sup>[40]</sup>Fig. 1 Exciton-polariton in WS<sub>2</sub><sup>[40]</sup>

同年, HU 团队利用 MoS<sub>2</sub> 材料实现了塔姆极化激元与激子的强耦合, 拉比分裂为 54 meV<sup>[31]</sup>。2017 年, WURDACK 团队则利用 GaAs 中的万尼尔 (Wannier) 型激子、单层 MoSe<sub>2</sub> 中强束缚谷激子和塔姆-等离子体-极化激元器件中的微腔光子间的强耦合机制, 形成了混合激子-极化激元强耦合<sup>[41]</sup>。

2020 年, XIE 等人从理论上研究了具有单个金属纳米棒的镜面纳米颗粒 (nanoparticle on mirror, NPoM)

图2 理论预测 WS<sub>2</sub> 中的超强耦合<sup>[29]</sup>Fig. 2 Theoretical prediction of ultra strong coupling in WS<sub>2</sub><sup>[29]</sup>

系统支持的磁偶极子模式与单层 WS<sub>2</sub> 中的激子之间的强耦合<sup>[29]</sup>, 其结构如图 2a 所示; 该团队证明了仅有少数激子 (激子数  $N < 10$ ) 参与时, 就可以产生高达 220 meV 的拉比分裂 (见图 2b), 比以往实验中实现的强耦合高了一个数量级; 该团队还提供了一种量子理论模型, 用于解释这种强耦合机制, 其与模拟的结果符合良好 (见图 2c), 并且指出: 随着该系统的非相干程度的增加, UPB 布居数将增加 (见图 2d), 这为未来实现极化激元激光提供了全新的思路。

## 1.2 相干性调控

相干性是满足激光标准的基础。然而, 迄今发现的这些单层半导体中的极化激元由于极化激元动力学的不可控和相干耦合减弱, 很难支持强非线性相互作用和量子相干性, 这为 2 维激子-极化激元的研究带来了不小的阻碍<sup>[42]</sup>。相干性减弱表现为分裂线宽比 (splitting-to-linewidth, SLR) 较小。大的 SLR 可以在高抽运密度下保持不受干扰的相干耦合, 支持强非线性极化激元相互作用, 并减缓相对于非线性相互作用率的极化激元泄漏率, 这对极化激元凝聚至关重要<sup>[43]</sup>。

激子-极化激元组成是控制极化激元凝聚态非线性相互作用的重要物理量<sup>[44-45]</sup>, 可以通过腔-激子的失谐直接管理。由于难以控制激子部分, 这种失谐通常通过对光子部分进行繁琐的修改来实现<sup>[44, 46-49]</sup>。2017 年, LIU 等人利用 TMD 中特有的 Wannier-mott 激子, 以其对温度的敏感性来控制激子与极化激元的耦合强度与失谐, 进而达到调节 SLR 的目的<sup>[50]</sup>, 该团队设计了一种紧凑的结构, 通过将脆弱的 2 维 WS<sub>2</sub> 夹于含氢硅酸盐 (hydrogen silsesquioxane, HSQ) 和 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 保护层中, 再在上下各放上 7.5 对、12.5 对 SiO<sub>2</sub>/Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 分布式 DBR 以实现强耦合激子极化激元, 其强耦合的特性可从图 3 中的双支极化激元色散特征中看出<sup>[50]</sup>。图 3a 中纵轴表示光子能量, 灰度表示反射率。在 TM 偏振下, 激子与腔模式耦合, 形成 UPB 与 LPB, UPB 的色散在小入射角时变平, 而 LPB 的色散在大角度时变平。空穴光子色散以蓝色虚线表示, 而激子能量 (2.078 eV) 则以红色虚线表示, 极化激元分支用品红色曲线标识。在入射角  $\theta$  的正弦值  $\sin \theta = 0.25$  时, 拉比分裂直接读数约为 40 meV, 因此 SLR 大于 3.3。通过改变温度, 调节 Wannier-mott 激子, 进而控制对应的样品失谐, 从而表现出不同的拉比分裂 (见图 3b)。130 K、210 K、230 K 时的拉比分裂为 39 meV、37 meV、36 meV。色散曲线与 PL 分布 (见图 3c) 非常一致, 证实了在这种非共振抽运过程中, 经过散射和热弛豫后的极化激元态是稳定的。极化激元中激子与光子的权重系数可由 Hopfield 系数给出。随着腔体失谐由负值



(130 K) 到接近零值 (210 K) 再到正值 (230 K), Hopfield 系数的变化表明, LPB 可以灵活地从更像光子的状态调谐到光子-激子混合状态, 并在小入射角下调谐到更像激子的状态 (见图 3d)。这种可调谐性提供了随意控制极化激元组成的自由, 从而优化了极化激元动力学。这项工作为极化激元凝聚提供了基础, 还为维持单层 TMD 中谷极化激元相干性带来了希望。

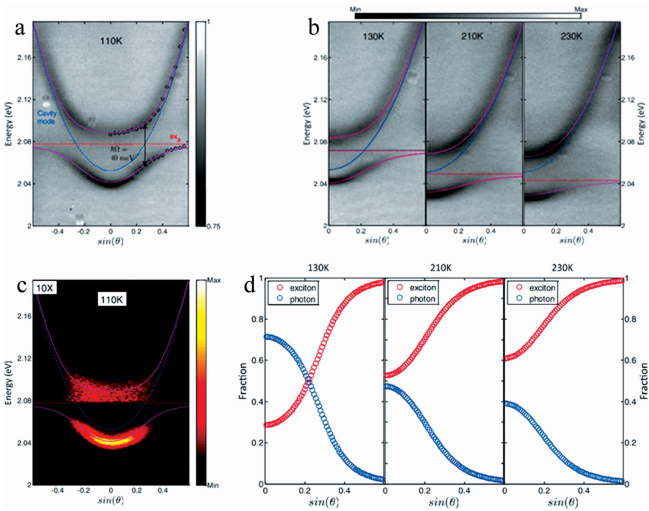


图 3 WS<sub>2</sub> 中极化激元相干性调节<sup>[50]</sup>

Fig. 3 Control of coherence of polariton in WS<sub>2</sub><sup>[50]</sup>

### 1.3 BEC 与极化激元激光

BEC 的实现对于极化激元激光的相干性有着重要的意义。在高温下实现 BEC 通常需要外界抽运能量, 当能量超过一定值时, 则会出现明显的阈值现象: PL 的强度有明显的非线性增长, 而峰宽则由于凝聚效应迅速下降到某个值附近, 表现出相干性。近年来有不少团队致力于实现单层 TMD 中的 BEC, 比如, 2018 年, WALDHERR 等人使用 GaAs 量子阱与单层 MoSe<sub>2</sub> 实现了超低温 (4.2 K) 下的 BEC<sup>[51]</sup>; 2021 年, ANTON-SOLANAS 团队利用 GaAs 和 MoSe<sub>2</sub> 实现了 BEC 以及对极化激元的谷调控<sup>[52]</sup>。这些工作为日后实现 2 维 TMD 极化激元激光铺平了道路。

2021 年, ZHAO 团队首次实现了室温下 2 维 TMD 材料的超低阈值极化激元激光<sup>[53]</sup>。如图 4a 所示, 实验微腔为全介质 λ/2 微腔, 由单层 WS<sub>2</sub>、DBR 和两个 SiO<sub>2</sub> 间隔层组成; 在强耦合以及抽运光源作用下, 激子-极化激元通过受激散射发生 BEC, LPB 色散表明大量粒子凝聚在基态 (见图 4b); 在高于阈值的抽运能量下, 极化激元发出陷阱态发射以及 LPB 发出非凝聚背景发射, 在 PL 谱中表现为非常细的洛伦兹峰以及背景发射宽峰 (见图 4c); 随着抽运能量的增加, 洛伦兹峰变得更加的尖细, 并且发生蓝移, 充分体现了激子-极化激元的 BEC 现象, 在迈克耳孙干涉仪下, 在时间

延迟 Δt = 0 的情况下有着不错的可见度, 进一步说明了发出的激光的相干性 (见图 4d); 如图 4e 所示, 通过减小微腔模式的失谐, 激光阈值可以降低, 最低可达到约 0.06 W/cm<sup>2</sup>, 这些工作为日后低阈值极化激元激光提供了良好的平台; 图 4f 中清楚地展示了在阈值附近出现的 PL 随抽运能量的非线性增长, 这与图 4c 相对应。

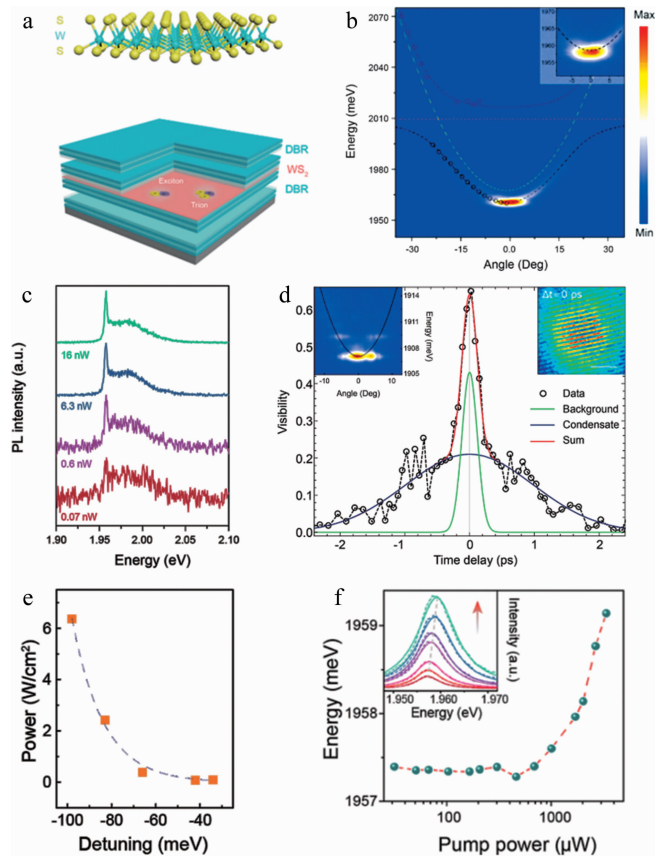


图 4 WS<sub>2</sub> 中的超低阈值极化激元激光<sup>[53]</sup>

Fig. 4 Ultra-low threshold polariton lasing in WS<sub>2</sub><sup>[53]</sup>

不同于前面提到的 LPB 的 BEC, 2023 年, CHEN 团队报告了在可转移 WS<sub>2</sub> 单层微腔中观察到上极化激元分支的 BEC (见图 5a)<sup>[54]</sup>。该团队设计了一种将 WS<sub>2</sub> 夹在两块由 SiO<sub>2</sub>/SiN<sub>x</sub> 层交替构成的 DBR 组成的光学微腔中。实验中, UPB 的 PL 比 LPB 的更强, 在增大功率时, 出现了明显的阈值现象 (见图 5b), PL 出现强烈的非线性增长, 峰宽降低为原本的 1/4 倍, 能量则出现 1 meV 的蓝移, 极化激元时间相干性增加; 通过调节迈克耳孙干涉仪的时间延迟可以测得当抽运功率从 0.6P<sub>th</sub> 增加到 2P<sub>th</sub> 时 (P<sub>th</sub> 为阈值能量), 相干时间 (δt) 从 55 fs 增加到 138 fs (见图 5c、图 5d); 该实验中, 强耦合机制下拉比分裂为 30 meV (见图 5e)。模型模拟与实验结果表明, 只有当 UPB 和下极化激元之间的转换时间长于或相当于极化激元的寿命时, 才会

发生 UPB 凝聚,在长寿命极化激元的情况下,UPB 衰变到 LPB 的速度要比在腔外衰变的速度快得多。正因为如此,几乎所有的 UPB 在逃逸出空腔之前都会首先转化为 LPB,从而使得 UPB 分支难以被探测到。随着受激散射导致的极化激元密度增加,这一转换时间会变得更短,最终快到足以与极化激元的寿命相媲美。这种效应也是上极化激元凝聚阈值低于下极化激元的重要因素。该工作对极化激元激光器的设计和开发具有实际意义,因为在极化激元激光器中,LPB 和 UPB 凝聚态之间的竞争起着至关重要的作用。

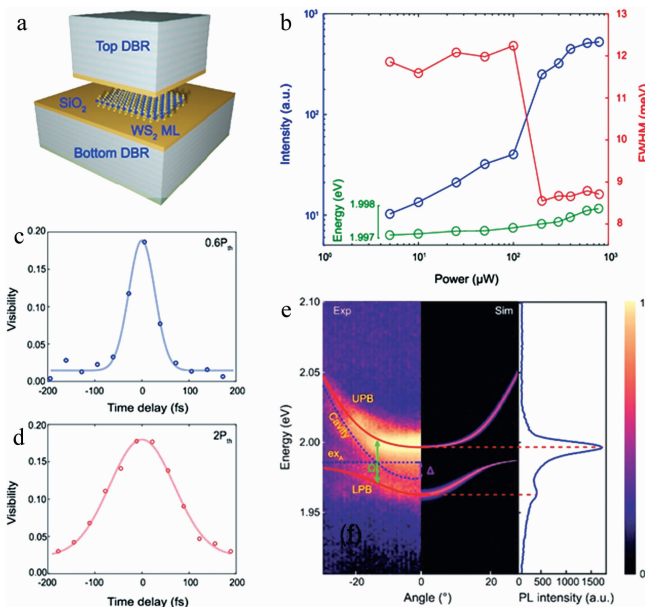


图5  $WS_2$  中的上极化激元 BEC<sup>[54]</sup>

Fig. 5 BEC of upper-branch exciton-polaritons in  $WS_2$ <sup>[54]</sup>

## 2 钙钛矿

与 2 维 TMD 相比,2 维钙钛矿的激子具有较高的振荡强度与结合能、更高的 PL 量子效率、非线性相互作用强度<sup>[55-57]</sup>、较高的缺陷容忍,另外相比于块状钙钛矿,2 维钙钛矿具有更好的湿度稳定性<sup>[58-59]</sup>。2 维钙钛矿的常见结构是  $A_2BX_4$ ,  $A$  是长链烷基铵,  $B$  是金属阳离子(通常是铅或锡),  $X$  是卤化物阴离子(Cl、Br 或 I)<sup>[55]</sup>,其中  $[BX_6]^{2-}$  八面体无机层形成了天然的量子阱结构。在这种结构中,有机阳离子起着势垒的作用,而激子则被限制在无机层中<sup>[60-61]</sup>。这样的结构使得 2 维钙钛矿具有与 2 维 TMD 相似的 2 维量子约束和介电屏蔽环境,从而导致其激子具有较大的振荡强度和较强的结合能(甚至高达 470 meV),一般高于 2 维 TMD。

与 2 维 TMD 类似,2 维钙钛矿也很容易实现强耦合机制。2018 年,WANG 团队实现了 2 维有机无机钙

钛矿材料的激子与单个微腔模式或多个混合微腔模式的强耦合(见图 6a)<sup>[62]</sup>。该系统由上下两块 DBR 镜构成的 F-P 微腔和单晶 2 维钙钛矿组成;PL 谱中(见图 6b),当失谐分别为  $-31.7$  meV、 $61$  meV、 $10.8$  meV 时,LPB 拉比分裂能分别为 205 meV、221 meV、242 meV,SLR 分别为 34.2、18.4 和 15.1,这一数值比 TMD 更大,充分说明钙钛矿材料有着更大的耦合强度;实验中还发现喇格模式和激子-空腔耦合态,在两份样品的角分辨 PL 谱中(见图 6c 和图 6d)可以明显看见喇格模式与极化激元的强耦合产生反交叉。该工作为调控相干光-物质耦合和杂化以及探索室温下 2 维钙钛矿的基本量子现象提供了一个理想的平台。2022 年,YEN 团队则利用  $CsPbBr_3$  的量子点特性提供了一种高度兼容的电流注入方案,以及一种直接可控的方法来适当分配激子中心,以促进与光子的强耦合,为实现电注入式极化器件提供了可能<sup>[63]</sup>。

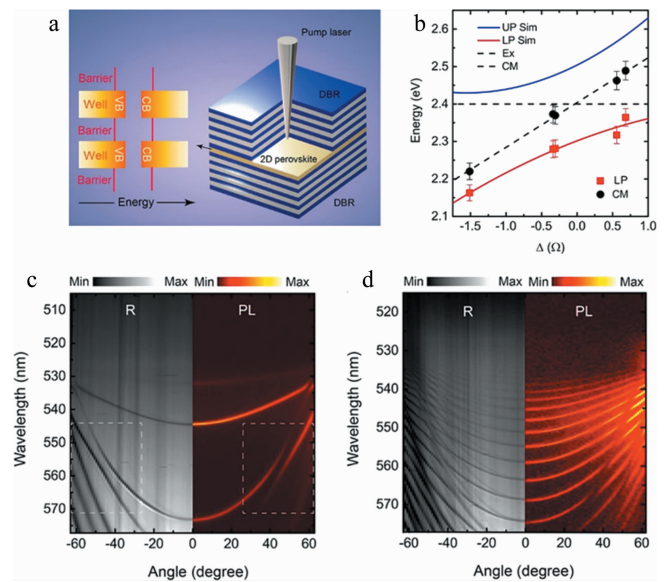


图6 2 维有机-无机钙钛矿激子与微腔模式的强耦合<sup>[62]</sup>

Fig. 6 Strong coupling between excitons and cavity modes in 2-D organic-inorganic perovskite<sup>[62]</sup>

以往 2 维钙钛矿从未出现凝聚现象。2020 年,POLIMENO 团队首次观察到了 2 维碘化苯乙胺钙钛矿( $C_6H_5(CH_2)_2NH_3)_2PbI_4$  (phenethylammonium lead iodide, PEAI) 的极化激元的凝聚<sup>[64]</sup>。如图 7a 所示,该实验中将 PEAI 夹在 Ag 和 DBR 构成的光学微腔中,通过增大抽运能量,发现了两个阈值,第 1 个阈值出现在抽运能量为  $50 \mu J/cm^2$  时,此时由双激子态发射,能量低于该阈值时,通过迈克耳孙干涉仪检测发现相干性较差;而第 2 个阈值出现在抽运能量为  $200 \mu J/cm^2$  时,此时由极化激元发射;继续增大能量,可以在迈克耳孙干涉仪下观察到良好的相干性(见图 7b);对比能



量与  $K$  空间的关系发现(见图 7c 和图 7d),相比于第 1 个阈值,达到第 2 个阈值时发射的能量坍塌在 LPB 的底部,形成极化激元凝聚;同时作者指出,只有高质量的 2 维晶体才会出现两种截然不同的阈值,当钙钛矿存在缺陷结构时,极化激元凝聚则不会产生,此时这些缺陷有更低的阈值,但是发射能量分散,相干性差,并且损坏阈值也更低。这项工作为有朝一日实现钙钛矿中的 BEC 开辟了道路<sup>[64]</sup>。

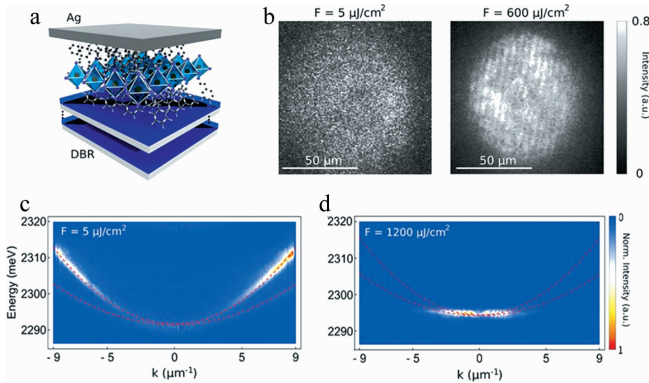


图 7 2 维钙钛矿中的双阈值现象与 BEC<sup>[64]</sup>

Fig. 7 Two threshold phenomenon and BEC in 2-D perovskite<sup>[64]</sup>

### 3 结束语

详细介绍了近年来 2 维 TMD 与 2 维钙钛矿中极化激元激光的研究进展,从两种材料的性质出发,介绍了这两种材料中激子与微腔模式的强耦合机制、极化激元相干性的调控、BEC 以及极化激元激光发射。极化激元激光近 10 年的发展无疑说明了 2 维 TMD 与 2 维钙钛矿材料巨大的潜力。然而迄今为止,成功实现 2 维 TMD 极化激元激光的实验仍寥寥无几,而 2 维钙钛矿中则尚未实现极化激元激光,同时 3 维室温极化激元激光却已有大量实验成功实现<sup>[11, 20, 65-69]</sup>,这充分说明了 2 维室温极化激元激光实现的难度。对于 2 维钙钛矿而言,为实现 BEC 以及提高环境稳定性,提高 2 维材料质量、减少结构缺陷或将成为重要的手段<sup>[64]</sup>。制备高品质的 2 维钙钛矿是实现 2 维极化激元激光应该攻克的难题。对于 2 维 TMD 而言,实现更强的激子与微腔模式的强耦合则有利于 BEC 的稳定性,比如通过设计更好的结构以减少微腔内激子与微腔系统的损耗<sup>[29]</sup>。为实现室温下更低阈值的极化激元激光,上极化激元以及失谐对于阈值的影响仍然需要深入研究<sup>[53-54]</sup>。此外,2 维极化激元激光未来还可以向多模式激光迈进,比如有团队已经将 2 维 TMD 与 2 维钙钛矿相结合,实现了双强耦合,这为实现双波长的极化激元激光铺平了道路<sup>[70]</sup>。

总之,2 维 TMD 与 2 维钙钛矿以其有着一系列良

好的性质,为室温低阈值的极化激元激光带来了全新的动力。为了有朝一日能够实现稳定的 2 维极化激元激光,需要更加先进的 2 维材料制备工艺,来对 BEC、强耦合等进行多方面的研究。

### 参 考 文 献

- [1] SU R, DIEDERICH S, WANG J, *et al.* Room-temperature polariton lasing in all-inorganic perovskite nanoplatelets [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(6):3982-3988.
- [2] RAM R J, PAU S, YAMAMOTO Y, *et al.* Nonequilibrium condensates and lasers without inversion: Exciton-polariton lasers [J]. *Physical Review*, 1996, A53(6):4250-4253.
- [3] CIUTI C, BAUMBERG J J, TEJEDOR C, *et al.* Polariton dynamics and Bose-Einstein condensation in semiconductor microcavities [J]. *Physical Review*, 2002, B66(8):85304.
- [4] MALPUECH G, DI CARLO A, KAVOKIN A, *et al.* Room-temperature polariton lasers based on GaN microcavities [J]. *Applied Physics Letters*, 2002, 81(3):412-414.
- [5] KASPRZAK J, RICHARD M, KUNDERMANN S, *et al.* Bose-Einstein condensation of exciton polaritons [J]. *Nature*, 2006, 443(7110):409-414.
- [6] KUMAR N. Bose-Einstein condensation in a dilute atomic vapour [J]. *Current Science (Bangalore)*, 1995, 69(6):492-493.
- [7] DENG H, WEIHS G, SNOKE D, *et al.* Polariton lasing vs. photon lasing in a semiconductor microcavity [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2003, 100(26):15318-15323.
- [8] HAUG H, YAMAMOTO Y, DENG H. Exciton-polariton Bose-Einstein condensation [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2010, 82(2):1489-1537.
- [9] LIU X, GALFSKY T, SUN Z, *et al.* Strong light-matter coupling in two-dimensional atomic crystals [J]. *Nature Photonics*, 2015, 9(1):30-34.
- [10] HEO J, JAHANGIR S, XIAO B, *et al.* Room-temperature polariton lasing from GaN nanowire array clad by dielectric microcavity [J]. *Nano Lett*, 2013, 13(6):2376-2380.
- [11] DAS A, HEO J, JANKOWSKI M, *et al.* Room temperature ultralow threshold GaN nanowire polariton laser [J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107(6):66405.
- [12] WEI M, RUSECKAS A, MAI V T N, *et al.* Low threshold room temperature polariton lasing from fluorene-based oligomers [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2021, 15(8):2100028.
- [13] FORREST S R, KÉNA-COHEN S. Room-temperature polariton lasing in an organic single-crystal microcavity [J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(6):371-375.
- [14] LA ROCCA G C. Polariton lasing [J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(6):343-345.
- [15] TANG J, ZHANG J, LV Y, *et al.* Room temperature exciton-polariton Bose-Einstein condensation in organic single-crystal microribbon cavities [J]. *Nature Communications*, 2021, 12(1):1-8.
- [16] FRENKEL J. On the transformation of light into heat in solids. I [J]. *Physical Review*, 1931, 37(1):17-44.
- [17] WEI M, RAJENDRAN S K, OHADI H, *et al.* Low-threshold polariton lasing in a highly disordered conjugated polymer [J]. *Optica*,

- 2019,6(9):1124-1129.
- [18] MOILANEN A J, ARNARDÓTTIR K B, KEELING J, *et al.* Mode switching dynamics in organic polariton lasing[J]. *Physical Review*, 2022, B106(19):195403.
- [19] GHOSH P, YU D, HU T, *et al.* Strong exciton-photon coupling and polariton lasing in GaN microrod[J]. *Journal of Materials Science*, 2019,54(11):8472-8481.
- [20] CHRISTOPOULOS S, VON HOGERSTHAL G B, GRUNDY A J, *et al.* Room-temperature polariton lasing in semiconductor microcavities[J]. *Physical Review Letters*, 2007,98(12):126405.
- [21] ZHAO D, LIU W, ZHU G, *et al.* Surface plasmons promoted single-mode polariton lasing in a subwavelength ZnO nanowire[J]. *Nano Energy*, 2020,78:105202.
- [22] MASHARIN M A, SAMUSEV A K, BOGDANOV A A, *et al.* Room-temperature exceptional-point-driven polariton lasing from perovskite metasurface[J]. *Advanced Functional Materials*, 2023,33(22):2215007.
- [23] DAI S, MA Q, LIU M K, *et al.* Graphene on hexagonal boron nitride as a tunable hyperbolic metamaterial[J]. *Nature Nanotechnology*, 2015,10(8):682-686.
- [24] BRAR V W, JANG M S, SHERROTT M, *et al.* Highly confined tunable mid-infrared plasmonics in graphene nanoresonators[J]. *Nano Letters*, 2013,13(6):2541-2547.
- [25] WANG X, CHENG Z, XU K, *et al.* High-responsivity graphene/silicon-heterostructure waveguide photodetectors[J]. *Nature Photonics*, 2013,7(11):888-891.
- [26] CHEN J, BADIOLI M, ALONSO-GONZALEZ P, *et al.* Optical nano-imaging of gate-tunable graphene plasmons[J]. *Nature*, 2012,487(7405):77-81.
- [27] CHERNIKOV A, ZHANG X, RIGOSI A, *et al.* Measurement of the optical dielectric function of monolayer transition-metal dichalcogenides: MoS<sub>2</sub>, MoSe<sub>2</sub>, WS<sub>2</sub>, and WSe<sub>2</sub>[J]. *Physical Review*, 2014, B90(20):205422.
- [28] GU J, CHAKRABORTY B, KHATONIAR M, *et al.* A room-temperature polariton light-emitting diode based on monolayer WS<sub>2</sub>[J]. *Nature Nanotechnology*, 2019,14(11):1024-1028.
- [29] XIE P, LIANG Z, LI Z, *et al.* Coherent and incoherent coupling dynamics in a two-dimensional atomic crystal embedded in a plasmon-induced magnetic resonator[J]. *Physical Review*, 2020, B101(4):45403.
- [30] WANG S, LE-VAN Q, VAIANELLA F, *et al.* Limits to strong coupling of excitons in multilayer WS<sub>2</sub> with collective plasmonic resonances[J]. *ACS Photonics*, 2019,6(2):286-293.
- [31] HU T, WANG Y, WU L, *et al.* Strong coupling between Tamm plasmon polariton and two dimensional semiconductor excitons[J]. *Applied Physics Letters*, 2017,110(5):51101.
- [32] MAK K F, SHAN J. Photonics and optoelectronics of 2D semiconductor transition metal dichalcogenides[J]. *Nature Photonics*, 2016,10(4):216-226.
- [33] YE Z, CAO T, O BRIEN K, *et al.* Probing excitonic dark states in single-layer tungsten disulphide[J]. *Nature*, 2014,513(7517):214-218.
- [34] BERKELBACH T C, HILL H M, RIGOSI A, *et al.* Exciton binding energy and nonhydrogenic rydberg series in monolayer WS<sub>2</sub>[J]. *Physical Review Letters*, 2014,113(7):76802.
- [35] ZHENG J, BARTON R A, ENGLUND D. Broadband coherent absorption in chirped-planar-dielectric cavities for 2D-material-based photovoltaics and photodetectors[J]. *ACS Photonics*, 2014,1(9):768-774.
- [36] DUFFERWIEL S, SCHWARZ S, WITHERS F, *et al.* Exciton-polaritons in van der Waals heterostructures embedded in tunable microcavities[J]. *Nature Communications*, 2015,6(1):1-7.
- [37] SCHWARZ S, DUFFERWIEL S, WALKER P M, *et al.* Two-dimensional metal-chalcogenide films in tunable optical microcavities[J]. *Nano Letters*, 2014,14(12):7003-7008.
- [38] REED J C, ZHU A Y, ZHU H, *et al.* Wavelength tunable micro-disk cavity light source with a chemically enhanced MoS<sub>2</sub> emitter[J]. *Nano Letters*, 2015,15(3):1967-1971.
- [39] ZHANG L, WU F, HOU S, *et al.* Van der Waals heterostructure polaritons with moiré-induced nonlinearity[J]. *Nature*, 2021,591(7848):61-65.
- [40] FLATTEN L C, HE Z, COLES D M, *et al.* Room-temperature exciton-polaritons with two-dimensional WS<sub>2</sub>[J]. *Scientific Reports*, 2016,6:33134.
- [41] WURDACK M, LUNDT N, KLAAS M, *et al.* Observation of hybrid Tamm-plasmon exciton-polaritons with GaAs quantum wells and a MoSe<sub>2</sub> monolayer[J]. *Nature Communications*, 2017,8:259.
- [42] WANG S, LI S, CHERVY T, *et al.* Coherent coupling of WS<sub>2</sub> monolayers with metallic photonic nanostructures at room temperature[J]. *Nano Letters*, 2016,16(7):4368-4374.
- [43] GIBBS H M, JAHNKE F, KIRA M, *et al.* Nonlinear optics of normal-mode-coupling semiconductor microcavities[J]. *Reviews of Modern Physics*, 1999,71(5):1591-1639.
- [44] OROSZ L, KAMOUN O, BOUCHOULE S, *et al.* From excitonic to photonic polariton condensate in a ZnO-based microcavity[J]. *Physical Review Letters*, 2013,110(19):196406.
- [45] RÉVERET F, MALLET E, DISSEIX P, *et al.* Polariton condensation phase diagram in wide-band-gap planar microcavities: GaN versus ZnO[J]. *Physical Review*, 2016, B93(11):115205.
- [46] 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.
- [47] DENG H, WEIHS G, SNOKE D, *et al.* Condensation of semiconductor microcavity exciton polaritons[J]. *Science*, 2002,298(5591):199-202.
- [48] von HÖGERSTHAL G B H, GRUNDY A J D, LAGOUDAKIS P G, *et al.* Room-temperature polariton lasing in semiconductor microcavities[J]. *Physical Review Letters*, 2007,98(12):126405.
- [49] ZHANG S, CHEN J, SHI J, *et al.* Trapped exciton-polariton condensate by spatial confinement in a perovskite microcavity[J]. *ACS Photonics*, 2020,7(2):327-337.
- [50] LIU X, BAO W, LI Q, *et al.* Control of coherently coupled exciton polaritons in monolayer tungsten disulphide[J]. *Physical Review Letters*, 2017,119(2):27403.
- [51] WALDHERR M, LUNDT N, KLAAS M, *et al.* Observation of bosonic condensation in a hybrid monolayer MoSe<sub>2</sub>-GaAs microcavity

- [J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1):1-6.
- [52] 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.
- [53] ZHAO J, SU R, FIERAMOSCA A, *et al.* Ultralow threshold polariton condensate in a monolayer semiconductor microcavity at room temperature[J]. *Nano Letters*, 2021, 21(7):3331-3339.
- [54] CHEN X, ALNATAH H, MAO D, *et al.* Bose condensation of upper-branch exciton-polaritons in a transferable microcavity[J]. *Nano Letters*, 2023, 23(20):9538-9546.
- [55] BLANCON J C, STIER A V, TSAI H, *et al.* Scaling law for excitons in 2D perovskite quantum wells[J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1):1-10.
- [56] BLANCON J, EVEN J, STOUMPOS C C, *et al.* Semiconductor physics of organic-inorganic 2D halide perovskites[J]. *Nature Nanotechnology*, 2020, 15(12):969-985.
- [57] FIERAMOSCA A, POLIMENO L, ARDIZZONE V, *et al.* Two-dimensional hybrid perovskites sustaining strong polariton interactions at room temperature[J]. *Science Advances*, 5(5):eaav9967.
- [58] ZHANG L, LIANG W. How the structures and properties of two-dimensional layered perovskites MAPbI<sub>3</sub> and CsPbI<sub>3</sub> vary with the number of layers[J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2017, 8(7):1517-1523.
- [59] HUANG H, BODNARCHUK M I, KERSHAW S V, *et al.* Lead halide perovskite nanocrystals in the research spotlight: Stability and defect tolerance[J]. *ACS Energy Letters*, 2017, 2(9):2071-2083.
- [60] PEDESSEAU L, SAPORI D, TRAORE B, *et al.* Advances and promises of layered halide hybrid perovskite semiconductors[J]. *ACS Nano*, 2016, 10(11):9776-9786.
- [61] SAPAROV B, MITZI D. Organic-inorganic perovskites: Structural versatility for functional materials design[J]. *Chemical Reviews*, 2016, 116(7):4558-4596.
- [62] WANG J, SU R, XING J, *et al.* Room temperature coherently coupled exciton-polaritons in two-dimensional organic-inorganic perovskite[J]. *ACS Nano*, 2018, 12(8):8382-8389.
- [63] YEN M, LEE C, YAO Y, *et al.* Tamm-plasmon exciton-polaritons in single-monolayered CsPbBr<sub>3</sub> quantum dots at room temperature[J]. *Advanced Optical Materials*, 2023, 11(4):2202326.
- [64] POLIMENO L, FIERAMOSCA A, LERARIO G, *et al.* Observation of two thresholds leading to polariton condensation in 2D hybrid perovskites[J]. *Advanced Optical Materials*, 2020, 8(16):2000176.
- [65] LANTY G, LAURET J S, DELEPORTE E, *et al.* UV polaritonic emission from a perovskite-based microcavity[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 93(8):81101.
- [66] WU J Z, LONG H, SHI X L, *et al.* Polariton lasing in InGaN quantum wells at room temperature[J]. *Opto-Electronic Advances*, 2019, 2(12):190014.
- [67] BAUMBERG J J, CHRISTOPOULOS S, von HOGERTHAL G B H, *et al.* Room temperature polariton lasing and BEC in semiconductor microcavities[C]//2008 Conference on Lasers and Electro-Optics and 2008 Conference on Quantum Electronics and Laser Science. San Jose, CA, USA: IEEE Press, 2008:1-2
- [68] DAS A, HEO J, GUO W, *et al.* Room temperature polariton lasing in a single ZnO nanowire microcavity[C]//2012 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO). San Jose, CA, USA: IEEE Press, 2012:1-2
- [69] KANG J W, SONG B, LIU W J, *et al.* Room temperature polariton lasing in quantum heterostructure nanocavities[J]. *Science Advances*, 2019, 5(4):eaau9338.
- [70] AL-ANI I A M, AS' HAM K, ALALOUL M, *et al.* Quasibound states in continuum-induced double strong coupling in perovskite and WS<sub>2</sub> monolayers[J]. *Physical Review*, 2023, B108(4):45420.