氧化锌微腔激光的模式调控

石增良¹, 王茹¹, 刘威¹, 卢俊峰², 王潇璇¹, 徐春祥^{1*}

1. 东南大学生物科学与医学工程学院, 生物电子学国家重点实验室, 南京 210096;

2. 南京航空航天大学理学院, 南京 211106

* 联系人, E-mail: xcxseu@seu.edu.cn

2019-10-31 收稿, 2020-01-06 修回, 2020-01-08 接受, 2020-01-10 网络版发表

国家自然科学基金(11734005)和国家重点基础研究发展计划(2017YFA0700503, 2018YFA0209101)资助

摘要 振荡模式的调控与单模激光的实现是微腔激光器走向实际应用所需解决的关键问题. 本文从微腔模式的基本理论出发, 按不同的调控机理梳理了ZnO微腔激光在模式调控方面的主要进展. 首先, 阐述了分布布拉格反射(DBR)或分布反馈(DFB)结构、腔体尺寸控制、游标效应等传统静态调控方式在ZnO微腔激光模式调控中的结构设计与研究进展; 进一步讨论了通过压电、电光等物理效应调制折射率来实现ZnO微腔激光模式的动态调控; 最后, 综述了表面等离子激元效应在实现纳米激光调控方面的最新进展, 并系统分析了相关调控手段在ZnO微腔激光模式调控中的优点及存在问题. 这些模式调控的方法不仅适用于ZnO紫外激光, 同时也为其他材料、其他波段的微腔激光提供了参考.

关键词 氧化锌, 微腔, 紫外激光, 模式调控, 回音壁模

随着微纳米光子学的发展, 紫外纳米激光器作为一种短波光电子器件在电子、信息、通信、环境监测与生物医药检验等领域应用具有广阔前景. 氧化锌(ZnO)具有3.37 eV的禁带宽度直接带隙, 室温下激子束缚能高达60 meV. 这一重要特性使其成为短波光电子材料与器件的重要候选材料, 也在低阈值、高品质因子的紫外激光器实现上体现出显著的优势. 自1997年, Segawa等人^[1]首次报道了室温条件下ZnO薄膜中的光泵浦紫外激光, 研究人员陆续报道了ZnO材料中的紫外受激辐射现象^[2-4]. 2001年, Yang课题组^[5]首次在ZnO纳米线中实现了紫外激光. 这些开创性的工作掀起了人们对ZnO材料中光泵浦和电泵浦紫外激光的研究热潮.

六角纤锌矿结构ZnO沿极性面与非极性面的生长速率不同, 导致ZnO容易获得丰富的微纳米结构, 如微纳米棒、微纳米碟、微纳米管、微纳米线、微纳米梳等^[6-13]. 其自身端面、侧面以及随机散射形成的光学反

馈, 使得ZnO微纳米结构形成自然的谐振腔并可以获得多种振荡方式的激光发射. 现有报道的ZnO微纳米结构产生的激光, 根据其共振腔的结构可以分为三类: 一是基于颗粒界面散射, 随机形成正反馈而得到的随机激光^[4,13-17]; 二是基于微米棒等规则结构的端面反射形成法布里-珀罗(F-P)激光^[5,18-21]; 三是基于微腔内壁全反射形成的回音壁模(WGM)激光^[12,22-28].

激光的优点在于方向性、单色性和相干性好, 一个理想的激光器输出光应按需控制输出模式. 如何实现模式可控和单模激光输出一直是激光器面向实际应用所需解决的关键问题. 虽然在诸多ZnO微纳米结构中实现了紫外激光, 但由于在微米尺度的微腔中一般都缺少有效的选取单纵模的机制, 导致群速度色散较大, 进而导致脉冲展宽, 难以实现单模输出; 而纳米尺度的微腔因光损耗较大, 难以形成有效振荡. 为实现ZnO微腔激光的模式调控及单激光模输出, 人们已进

引用格式: 石增良, 王茹, 刘威, 等. 氧化锌微腔激光的模式调控. 科学通报, 2020, 65: 2691-2707

Shi Z L, Wang R, Liu W, et al. Lasing mode regulation in zinc oxide microcavity (in Chinese). Chin Sci Bull, 2020, 65: 2691-2707, doi: [10.1360/TB-2019-0685](https://doi.org/10.1360/TB-2019-0685)

行了各种有益探索. 本文着重介绍了近年来在ZnO微腔激光模式调控和单模激光实现方面采取的一些措施和取得的重要进展.

1 ZnO微腔模式的基本性质

最初报道ZnO纳米薄膜中的激射属于随机激射, 其相干反馈是靠回程散射自发形成的. 这种随机激光的形成是在纳米结构间隙中而不是纳米结构的内部, 其发光机理可以用安德森(Anderson)局域化理论来解释. 当光在无序介质中传播时, 若散射光在介质中的平均自由程小于或等于波长时, 可能产生回程散射, 从而形成一个闭合环形光路. 若光在沿环路传播过程中的增益大于损耗, 并且运行一周时相位改变为 2π 的整数倍, 就可能形成一个振荡激光. 由于光在增益介质中经过多次散射后会形成不同的激光腔, 每个腔的频率、位置、光的输出方向及激光模式都是随机的, 因此随机激光并非是实现ZnO紫外激光器的最佳方法.

ZnO微纳米结构中稳定的激光模式主要为F-P和WGM模式. 一般而言, 对于ZnO纳米棒或纳米线等结构, 依靠两个端面反射, 在满足了相长干涉条件之后可以形成F-P微腔谐振模式. F-P型ZnO微腔激光的模式间隔 $\Delta\lambda$ 及品质因子 Q 可以用平面腔镜激光器模型估算^[29,30], 它们可表达为

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{2L(n - \lambda \frac{dn}{d\lambda})}, \quad (1)$$

$$Q = \frac{2nL\pi}{\lambda\sqrt{1-R_1R_2}}, \quad (2)$$

式中, λ 为共振波长, n 为ZnO的相对折射率, 是波长的函数, $dn/d\lambda$ 为ZnO的色散关系, L 为腔长, R_1 及 R_2 表示两个平行晶面的反射率. 虽然在ZnO微纳结构中可以形成F-P共振模式, 但随着腔体直径减小(特别是在亚波长尺寸), 界面处以衍射损耗为主的光学损耗急剧增大, 激光品质因子较低, 难以实现有效增益.

高质量的ZnO微纳米结构一般都具有规则的正六边形截面结构, 该结构可以使得光在六边形截面内不断全反射形成WGM受激辐射. 由于ZnO具有较大的增益系数, 可在ZnO WGM微腔中实现高品质因子和低阈值的激光辐射. 与F-P腔共振相同, 若要形成WGM共振, 光在腔体内壁全反射后需要满足相长干涉条件. 对于六边形截面的ZnO WGM微腔闭合光路(闭合光路长度为 $L=3\sqrt{3}D/2$, D 为腔体直径), 则可利用式(1)计算其模

式间隔 $\Delta\lambda$. 每次内壁全反射相移可以表示为 $\tan^{-1}n\sqrt{3n^2-4}$, 其总相位角变化为 2π 的整数倍, 利用菲涅尔(Fresnel)公式可给出WGM的共振方程^[25], 进而确定受激辐射波长 λ 及其共振模式数 N . 六边形截面的ZnO WGM微腔的共振模式数 N 和受激辐射波长 λ 需要满足下列关系:

$$nL = \left(N + \frac{6}{\pi} \tan^{-1} n \sqrt{3n^2 - 4} \right) \lambda. \quad (3)$$

Bhowmik解析了正多边形微激光腔的品质因子^[31], 对于六边形ZnOWGM微腔, 其对应的品质因子 Q 表示如下:

$$Q = \frac{3\pi D \sin(\pi/3) R^{3/2}}{\lambda(1-R^3)}, \quad (4)$$

式中, n 为ZnO的相对折射率, 是波长的函数, 可以通过色散关系描述; R 为光线在界面处的反射率. 通常从微腔中输出的激光辐射应该包含TE和TM两种偏振模式. 由于ZnO是一种纤锌矿结构的双折射率材料, 在紫外光范围内, TM偏振比TE偏振的强度弱很多, 一般只讨论TE模式. 利用共振方程(3)和色散公式可模拟得到腔体的光场分布和共振峰位置, 如图1所示为直径6.67 μm 的六边形截面ZnO微米棒共振峰位置的模拟结果与实验观察到的光谱关系, 受激辐射峰实验值和理论结果基本吻合. 根据式(4), 利用实验所得 Q 、 D 和折射率 n 反推出界面处反射率 R 达95%, 这一结果说明回音壁腔体

图1 (网络版彩色)ZnO微腔的激射光谱. (a) ZnO微米棒中的TE共振模式位置(色散曲线拟合); (b) 实验受激辐射谱^[12]. Copyright © 2014 AIP Publishing
Figure 1 (Color online) Lasing spectrum of the ZnO microcavity. (a) The simulated TE modes labeled with the mode numbers in the dispersion curve; (b) the lasing spectrum of the ZnO microrod^[12]. Copyright © 2014 AIP Publishing

的界面反射接近全反射,从而验证了ZnO微米棒中的回音壁模受激辐射机制^[12]。

WGM微腔的 Q 值与能量损耗成反比, Q 值越高,光子寿命越长,被束缚的光场与物质的相互作用强,反之相互作用弱。微腔中的本征能量损耗主要由辐射损耗、吸收损耗和散射损耗构成。微腔的辐射损耗主要来源于光在弯曲的介质表面全反射时,存在一定的透射几率,与微腔尺寸大小以及微腔与外界折射率对比有关。吸收损耗来源于构成微腔的介质材料和周围环境对电磁波的吸收。散射损耗则来源于微腔表面的不均匀起伏和介质内部的结构缺陷。

综上所述,要想实现ZnO微腔激光的模式调控,主要可以从设计和调控腔体结构、增益与损耗的对比、介质有效折射率等这些主要影响因素来实施。下面将具体介绍基于分布布拉格反射(DBR)或分布反馈(DFB)结构、腔体尺寸控制、游标效应、压电效应、表面等离子激元效应等多种调控方法在ZnO微腔模式调控中的应用及最新进展。

2 ZnO微腔模式的静态调控

2.1 基于DBR或DFB结构的模式调控

DBR或DFB结构是半导体激光器中最常用的结构,具有单模输出、窄线宽,易与集成半导体技术兼容的优点。布拉格光栅仅将选中的波长反馈回激光腔振荡放大,产生非常窄的谱宽(即单模),其波长由光栅的条纹间隔和半导体的折射率决定。2000年,Finger等人^[32]用耦合模式理论分析了TM偏振下具有金属表面光栅结构的DFB激光器的模式特性。随后,基于DBR或DFB结构的半导体激光器模式调控方面的研究工作取得很大进展。Wright等人^[33]将氮化镓纳米线与介电光栅耦合构建了DFB纳米线激光器,通过改变纳米线和光栅之间的角度,实现了有效的模式调控及单模激射。Wang等人^[34]利用室温纳米压印技术直接在SiNC有源层构建DFB腔,获得了很高的光学增益,实现了低阈值的单模激光。不同于介质光栅,Sun等人^[35]研究了卤化铅钙钛矿纳米带在金等离子体光栅上的模式限制,发现了纳米激光阵列中每个激射单元中的F-P模式都受到水平波导模的良好限制,受吸收和辐射泄漏的影响较小。

近年来,基于DBR或DFB结构的ZnO激光器也取得了一定进展。如Hofstetter等人^[36]利用Si₃N₄衍射光栅制

备了ZnO基DFB结构激光器,用于激射模式调控,并在10~270 K的温度范围内实现了单模激射。Lai等人^[37]利用AlN/AlGaIn和SiO₂/HfO₂两种DBR结构制备了ZnO耦合微腔,实现了常温下的极化激元激射。Li等人^[38]利用ZnO单晶衬底和SiO₂/HfO₂布拉格反射镜构建了平面DFB光学微腔,实现了室温激射的ZnO激光。虽然利用DBR或DFB结构的ZnO微腔激光模式调控取得了一定进展,但该结构需要精确光学设计和精密光学加工制备,难以在ZnO微腔激光器中大规模应用。

2.2 基于腔体尺寸的模式调控

对于高增益半导体材料,即使是小体积的半导体增益介质也具有足够高的增益来补偿腔的损耗。因此,缩小激光腔的尺寸是半导体激光器发展的主要方向之一。由前述理论可知,腔体尺寸越小,激光共振模式间距变大,共振模式数变少。那么通过减小腔体尺寸从而使得腔体的自由波谱范围(FSR)超出增益介质光谱范围是一种相对简单的模式调控方法。

过去十多年里,人们通过生长工艺的完善,实现了ZnO腔体尺寸的可控制备,从而调控增益光谱范围内允许存在的模式数目,进而实现ZnO微腔的模式调控。例如,2008年,Zimmerler等人^[39]采用减小腔体尺寸的方式,调控增益光谱范围内允许存在的模式数目,实现了ZnO纳米线中从多模向少模演变的F-P腔模激射,固定波长的模式间距与腔长成反比例关系。本课题组^[40]在不同直径ZnO微米棒WGM激光行为的研究基础上,系统分析了ZnO微米棒中WGM激光光谱从多模到少模直至单模的演化过程,如图2(a)所示。ZnO微米棒激光共振峰的半高宽和模间距随微米棒直径的减小而增大。半高宽变宽意味着随微米棒尺寸的减小光学损耗增加导致激光品质因子降低,而小尺寸微腔具有较宽的模间距也与式(1)理论计算相符。同时还发现,微米棒WGM激光的品质因子随直径的增大而增高,而激射阈值则随直径的增大而降低。因不同直径ZnO微米棒对光场的束缚能力不同,导致光学损耗不同,ZnO微米棒中共振模式的个数随微米棒直径的减小而减少,这也与式(3)理论计算相符。由此推断,当微米棒的直径进一步减小到一定尺寸的时候,会在光谱中出现单个共振模式(即单模激光)。如图2(c)所示,在亚微米尺寸(直径约596 nm)的ZnO纳米棒中实现了单模WGM激光输出,在激发功率密度为1000 KW/cm²时,共振峰的半高宽(FWHM)约为0.98 nm,激光的品质因子大约为400。另

图2 (网络版彩色)腔体尺寸变化的ZnO微腔激光模式调控。(a)不同直径ZnO微米棒中的WGM腔模激励;(b)单根亚微米尺寸ZnO纳米棒的扫描电子显微镜(SEM)图;(c)单根亚微米尺寸ZnO纳米棒在不同激发功率密度下的PL谱^[40]。Copyright © 2015 American Chemical Society

Figure 2 (Color online) Lasing mode regulation in ZnO microcavity by the change of cavity size. (a) WGM mode lasing spectra of the ZnO microrods with different diameter. (b) SEM image of a submicron-sized ZnO nanorod. (c) Excitation power density dependent PL spectra of a submicron-sized ZnO nanorod^[40]。Copyright © 2015 American Chemical Society

外, Yang课题组^[41]通过自下而上法合成了直径280~900 nm的ZnO纳米盘,在不同直径纳米腔内实现了WGM单模紫外激光及调控,如图3(a)所示。图3(b)给出了ZnO纳米盘直径与室温下激光阈值的曲线图,发现随着纳米盘直径的减小,使得激光阈值增加。这是由于纳米盘的品质因子和限制因子都依赖于微腔直径^[31,42],当微腔直径减小,导致光模从纳米盘的外边界“溢出”,导致损耗增加,降低了腔的品质因子。而激光阈值与品质因子成反比,随纳米盘直径减小而增加。

尽管通过微腔结构尺寸的控制,可以实现ZnO微腔激光模式的调控,并在亚波长尺寸微腔中实现单模激光。但伴随着腔体尺寸的减小,微腔的光损耗急剧增加,导致实现激射的阈值很高,甚至难以实现有效增益。这就需要引入新的物理效应或方法,可使ZnO微腔光场得到更好的限域,从而提升微腔增益,降低激射阈值。

2.3 基于游标效应的模式调控

当倏逝波耦合条件得到满足,在两耦合的微腔中共振模式之间发生相互作用,发生能量转移,一腔可以

被视为另一个谐振腔共振波长的光谱滤波器。因此,某些共同存在的谐振模式会被增强,而其他模式会得到抑制,这种现象被称为游标效应。基于游标效应,如果在两个独立谐振腔里共同存在的激光模式会被选择出来并且得到增强,而其他模式会逐渐耗散直至消失;最终极大扩展了自由光谱范围,超出了增益介质的光谱宽度,使得单模激光成功输出^[43]。该方法可以保持高光学品质因子和低激发阈值^[44],已成功地在微环谐振器、微盘和其他微/纳米尺度半导体结构等各种耦合WGM腔中实现了单模激光输出。

Gao等人^[45]用聚焦离子束刻蚀(FIB)切割单根9 μm的GaIn纳米线,其切割比例为4:3,双组分的纳米线半径约为100 nm,精确设计了轴向耦合腔体的光滑端面 and 内腔间隙宽度(仅为40 nm),实现了腔体间的强耦合,成功输出了单模激光。Xiao等人^[44]制备出六边形截面的CdSe纳米线,将其作为增益介质和光波导,通过微操作来精确控制一个直径为200 nm的CdSe纳米线的三维运动,将其折叠形成环形镜,制备出复合腔体结构,成功将多模激光输出转换成位于738 nm的单模激光输出。同年,他们又通过两根直径为420 nm的CdSe纳米线

图 3 (网络版彩色) ZnO 纳米盘的单模激光。 (a) 室温下不同直径 ZnO 纳米盘的王微腔单模激光特性; (b) 室温下激光阈值与纳米盘直径关系, 插图为纳米盘 $|E|^2$ 的光学模式在 XY 和 XZ 平面的仿真^[41]。 Copyright © 2010 American Chemical Society

Figure 3 (Color online) Single mode lasing of ZnO nanodisks. (a) Room temperature, single-mode lasing properties of ZnO nanodisks with various diameters. (b) Room temperature lasing threshold vs. disk diameter. The inserted image are the optical mode simulations of the calculated $|E|^2$ field in the XY and XZ plane^[41]. Copyright © 2010 American Chemical Society

形成一个X型结构的耦合腔^[46], 通过耦合腔的游标效应实现位于734.3 nm处的单模激光发射, 其线宽是0.11 nm, 激光阈值约为120 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ 。Zhu等人^[47]用ZnS微米带包裹耦合光纤形成环形耦合微腔, 作为波导和增益介质, 通过ZnS微米带的环形结构抑制了TM模式, 进而实现了耦合非对称环形腔中定向单模激光输出, 并揭示了游标耦合效应和不对称环形腔的几何变形是产生稳定的定向单模发射的原因。Xu等人^[48]则利用从上向下两步蚀刻技术, 通过纳米操纵使得一对耦合的GaIn纳米线接触形成耦合腔, 并通过游标效应成功获得了位于370 nm的单模紫外激光输出。Shang等人^[49]研究了两根不同直径的光纤, 两个圆形腔产生耦合, 产生了单模激光, 并揭示了游标效应的机理。Huang等人^[50]理论分析了两根平行的SiO₂的纳米线之间的耦合作用, 发现耦合纳米线交叠部分的长度不同, 带来的耦合效果也不同。由于游标效应涉及两个耦合腔的尺寸及其共振特性, 且两腔间距必须小于临界耦合距离, 因此现有报道多采用较为复杂的微操作精确控制耦合距离,

这使器件设计与操控的灵活性受到了很大的限制。

在ZnO WGM微腔中, 倏逝场沿径向(垂直于空气/ZnO界面)呈指数衰减, 其中倏逝波的穿透深度 d_p 可用下式表示^[51]。

$$d_p = \frac{\lambda}{2\pi\sqrt{(n_{\text{ZnO}}\sin\theta)^2 - n_{\text{air}}^2}} \quad (5)$$

式中, d_p 为穿透深度, 定义为电场强度从空气/ZnO界面处衰减到1/e值的距离, n_{ZnO} 和 n_{air} 分别表示制备的ZnO微腔和周围空气的折射率, λ 表示真空中光传播的波长, θ 是入射角, 即入射光方向和微米棒/周围空气界面的法线方向之间的夹角。根据ZnO增益光谱范围(385~400 nm), 代入式(5)计算得到 d_p 为30~37 nm。这表明, 当两耦合微米棒之间的空气间隙小于两腔各自临界距离之和时, 从微米棒逸出的倏逝波可与相邻微米棒中的光进行有效耦合。只要倏逝波耦合条件得到满足, 在两耦合的微米棒中就能发生能量转移, 某些共同存在的谐振模式会被增强, 而其他模式会得到抑制^[52,53]。

本课题组^[54]选用ZnO微米梳的独特结构, 基于游标效应方法, 无需复杂的微加工操作工艺, 巧妙地设计成ZnO回音壁模耦合微腔, 即能实现单模激光的输出. 通过变化梳齿间距可以实现调控回音壁腔体耦合, 当两根微米齿之间的距离小于临界耦合间距时, 两根微米齿分别产生的WGM激光会发生耦合相互作用, 进而基于游标效应可以成功实现ZnO微米梳中单模WGM激光的输出. 如图4(a)所示, 通过调控耦合的微米齿的尺寸大小和间距, 得到了最佳性能的单模激光及其产生条件, 输出的单模激光具有阈值低、品质因子高、边模抑制比高的优点. 为了优化单模激光的性能, 获得高品质因子和低阈值的单模激光, 选择不同尺寸耦合腔体进行研究, 获得了不同波长的单模激光, 从而得到尺寸对单模激光光学性能的影响, 如图4(b)所示. 我们又利用微探针操控微米棒至微球的相对位置, 实现了同一微球腔与不同微棒腔之间的耦合, 较为灵活地实现了单模激光的模式调控, 如图4(c), (d)所示.

基于游标效应的模式调控所产生的单模激光远高于亚波长直径纳米腔体中的单模激光, 对实现单模回音壁激光给出了一个重要的参考方法. 为了进一步优化单模激光的性能, 结合ZnO微腔与金属纳米粒子之

间的表面等离子体共振耦合, 获得高品质因子 Q 值和低阈值的单模激光^[55].

3 ZnO微腔模式的动态调控

如前所述, 利用DBR或DFB结构、腔体尺寸控制、游标效应等诸多方式可实现对ZnO微腔的激光模式的有效调控, 并获得单模激光输出. 但这些传统的调控方法仅适用于预先设计的腔结构, 或需高度依赖于复杂的微加工技术. 同时, 减小腔的尺寸来扩展FSR会抑制光增益的获取, 不仅会导致光损耗的增加, 还会导致激光阈值的增加. 另外, 利用这些方法实现的模式调控不具备可逆性, 这迫切需要寻找新原理、新方法、新途径来实现激光模式的动态调控. 下面主要介绍利用压电效应和电光效应对ZnO材料的折射率进行有效调控, 从而实现了ZnO微腔激光模式的动态调控.

3.1 基于压电效应的模式调控

以往研究人员已利用压阻效应和压电极化效应对一些材料的光学带隙或折射率进行调控^[56-60], 为动态调控增益区域和模式位置提供了一种可行的策略, 有望实现激光模式调制. 早在1967年, Vedam和Davis^[61]

图 4 (网络版彩色)基于游标效应的ZnO微腔模式调控及单模实现. (a) 单根微米棒E和F归一化激光光谱, 以及位置IV处归一化激光光谱; (b) 3种不同直径耦合腔中的单模激光^[54], Copyright © 2016 Royal Society of Chemistry; (c) ZnO微米棒与微米球的耦合示意图; (d) 不同耦合腔中的单模激光调控

Figure 4 (Color online) Lasing mode regulation and single-mode realization in ZnO whispering gallery microcavities by vernier effect. (a) The normalized lasing spectra from single microrod E and single microrod F and coupled microrods at position IV. (b) Three types of single mode lasing from different diameters of the coupled microrods^[54], Copyright © 2016 Royal Society of Chemistry. (c) The coupling schematic diagram of ZnO microrod and microsphere. (d) Single mode lasing with different coupling cavities

就报道了在纤锌矿结构晶体中, 压力诱导极化率对折射率的影响大于单位体积色散中心数目增加所引起的折射率的影响. 非中心对称的六方纤锌矿ZnO微纳米结构不仅为光振荡提供了一种自然的结构, 同时也具备特殊的压电性能^[62-64]. 当材料受到外加应力时, 晶体内部的离子极化引起介质介电常数的变化, 从而对材料折射率进行有效调控, 结合控制谐振腔尺寸来调节FSR来控制激光模式输出的方法, 有望实现动态、连续可调的激光模式输出, 并获得单模激光输出. 它避免了使用亚微米尺寸的腔体结构来实现少模甚至单模输出而造成的光场限域能力降低及能量损失.

2018年, Lu等人^[65]结合ZnO材料固有的高激子束缚能和压电特性等物理优势, 通过外部机械应变引起的微腔晶体内部的离子极化, 调控ZnO微腔本身的折射率, 实现了动态、可持续调制的激光模式输出, 并灵活地进行模式选择. 如图5(a)所示, 随着拉伸应变的增

加, 压电极化引起折射率增加, ZnO激励模式产生了红移现象, 并建立起应变与腔体折射率变化的依赖关系. 在此基础上, 进一步利用压电极化效应和压阻效应协同作用, 对激光模式进行选择输出, 并最终实现单模激光输出与动态调控^[66]. 图5(d)分别给出了在不同压缩应变和拉伸应变下TE₁₇和TE₁₆模共振波长与折射率的关系, 系统分析压缩和拉伸应变对ZnO微腔折射率的调控. 他们认为在接近带隙能量的共振频率下, 压电极化效应对折射率的影响较大, 清楚地阐明了折射率变化的主要原因. 此外, 他们系统阐述了压阻与压电极化效应的协同作用对增益区间与腔模的调控机制, 如图5(e)所示. 在正常状态下, 只有增益谱线超过阈值部分的模式能够被放大而选出. 当施加拉伸应变, 增益谱和激光模式将发生红移. 由于模式移动速度比增益谱移动得慢, 在拉伸状态下, 只有一个模式被放大而选出. 最终, 可以在一定波长范围内实现单模激光输出及其动态调

图5 (网络版彩色)基于压电效应ZnO微腔激光模式的动态调控. (a) 拉伸应变下ZnO微米线的激光光谱; (b) 正常和拉伸状态下能带间隙位移示意图^[65], Copyright © 2018 American Chemical Society; (c) 不同压缩和拉伸应变下ZnO微米棒的自发与受激光谱; (d) 不同压缩应变和拉伸应变下TE₁₇和TE₁₆模共振波长与折射率的关系; (e) 正常态和拉伸态的增益谱和激光模式位置^[66]. Copyright © 2019 Elsevier

Figure 5 (Color online) Dynamic regulating of lasing mode in ZnO microcavity by piezoelectric effect. (a) ZnO microwire lasing spectra under different tensile strain. (b) Schematic diagram of energy bandgap shift under normal and tensile states^[65]. Copyright © 2018 American Chemical Society. (c) Spectra of stimulated and spontaneous emission for the ZnO microrod under different degrees of compressive and tensile strain. (d) The relationship of the resonant wavelength for TE₁₇ and TE₁₆ mode with refractive index under different compressive and tensile strains. (e) The gain spectra and lasing mode positions at the normal and tensile states^[66]. Copyright © 2019 Elsevier

控.在此基础上,建立了应变与模式移动的对应关系,获得了超精确度的应力传感,相比较压阻效应引起的能带移动所导致的自发辐射谱的移动,其光谱分辨能力提升了一个数量级.最近,该团队又报道了一种基于压电效应的GaN WGM激光模式动态调控,并获得高精度的应变传感器^[67],进一步推动了压电效应在不同半导体微腔的动态模式调控方面的探索.

在不改变宏观环境的情况下,利用压电效应可实现对ZnO WGM激光模式动态调控,这为激光波长的动态调谐打开了一种新思路,为动态调控相干光源提供了一种行之有效的方法.但由于压电机机械反应时间较长,该调控方式不利于器件在高灵敏度以及在快速检测中应用.

3.2 基于电光效应的模式调控

克尔电光效应是一种非线性电光效应,材料折射率在电场作用下随电场的平方成线性变化.作为一种具有光学各向同性的单晶材料,ZnO具有明显的非线性光学现象^[68,69],并已在ZnO微米棒中证实了克尔电光效应的存在^[70],使得ZnO的克尔电光效应也引起了人们的广泛关注.另外,高品质WGM微腔可以在腔内长时间存储光,并能强烈增强各种非线性相互作用^[71].因此,利用外电场作用下克尔电光效应改变ZnO材料的折射率的特性,可实现对微腔的共振模式进行动态调控.

最近,本课题组利用石墨烯在非线性光场中具有增强局部发光的特性,在石墨烯/ZnO复合微腔激光的研究基础上,构建了石墨烯/ZnO微米棒类场效应晶体管,利用栅极给ZnO微米棒施加外电场,发现栅极电压无论是向正向增加还是负向增加,激光峰值都会出现

红移,如图6(a)所示.在一定模式中,激光波长随着栅极电压的变化而移动,分析了不同模式下折射率差值与栅压的关系,得到了折射率变化与栅压成平方关系,如图6(b)给出了TE₁₂₈模式下ZnO的折射率变化与栅压的关系.另外,由于石墨烯优异的导热特性,排除了热光效应对ZnO折射率的影响.证实了基于克尔电光效应,通过外加电场改变ZnO的折射率,成功地实现了ZnO微腔激光模式的动态调控.虽然基于ZnO的克尔电光效应所进行动态模式调控范围有限,但由于许多适用于光子器件及其集成的材料中存在非线性,随着技术的完善,有望利用电光效应对微腔激光模式进行较大范围有效电场调控,实现动态且简便灵敏的激光模式调控.

除了压电效应、电光效应外,也有研究者利用电致伸缩、热光效应^[72]等实现了对激光模式的动态调控,但目前的研究工作仍处于探索阶段.

4 基于表面等离子激元效应的模式调控

电磁场(光场)激发下,金属表面自由电子的集体振荡形成空间上高度局域的电子振荡波——表面等离子激元,它是存在于金属表面的一种非辐射局域模式.依据传播特性,表面等离子激元存在两种形式:一种是在连续金属膜表面传播的传导型表面等离子激元(SPPs);另一种是局域于纳米金属颗粒或粗糙金属结构表面的局域表面等离子激元(LSPs)^[73,74],它们都具有空间局域和近场增强特性.利用表面等离子激元这些特性,光子可以突破衍射极限在亚波长尺度内传播,将光子器件的尺寸减小到纳米量级,大大提高光子器件的集成度.通过控制表面等离子波传播方式,可以实现对激光模式的强度、

图6 (网络版彩色)基于电光效应的ZnO微腔模式调控. (a)不同栅压下ZnO微腔的激光光谱; (b)TE₁₂₈模式下ZnO的折射率变化与栅压的关系
Figure 6 (Color online) Dynamic regulating of lasing mode in ZnO microcavity by electro-optic effect. (a) ZnO microcavity lasing spectra under different gate voltage. (b) The relationship of the change of ZnO refractive index with gate voltage under TM₁₂₈ mode

阈值、 Q 值等因素的有效调控。

4.1 基于LSPs效应的微腔激光模式调控

金属表面等离激元共振峰位与ZnO发光峰峰位的相对关系决定了ZnO发光是增强还是减弱,因此可以通过不同金属表面等离激元来实现对ZnO发光增强控制。2005年, Ong课题组^[75]对金属Ag、Au增强ZnO薄膜近带边光致发光进行了研究,表明Ag薄膜对ZnO发光增强的影响来源于表面等离激元消逝波电场的作用,并认为发光强度的增强是由于表面等离激元与ZnO自发发射光子相耦合的结果。随后,他们用Al/AIO_x结构来包覆ZnO薄膜材料,发现可以使ZnO的发光强度提高16倍^[76]。Liu等人^[77]则研究了金属Pt对ZnO薄膜光致发光特性的影响,利用周期性的金属Pt纳米结构,可以使得ZnO薄膜材料的光致发光提高12倍。此外,他们还利用Au纳米粒子实现了对ZnO纳米线的发光增强,并获得

了有意义的结果^[78,79]。由此可见,利用金属表面等离激元确实可以有效地提高ZnO材料的发光效率。

在金属等离激元增强ZnO紫外荧光的基础上,人们还研究了其对于ZnO激光特性的影响。本课题组利用不同金属纳米颗粒的LSPs效应与ZnO WGMs之间的共振耦合来改善激光性能,实现了更低阈值及更高品质因子的WGM激光。我们将金纳米颗粒修饰不同ZnO微腔结构,分别实现了Au纳米颗粒LSPs共振增强的ZnO F-P激光^[80]和WGM激光^[81]。另外,我们在ZnO/Au NPs复合体系中不仅观察到了ZnO自发辐射增强,同时发现了由B-M效应导致的光谱蓝移现象^[82]。由于Au纳米颗粒的表面等离激元共振(SPR)峰主要位于520 nm附近,紫外激光加强的机理归因于SPR辅助的电子转移过程,该过程中ZnO缺陷发光的能量被Au纳米颗粒吸收,使得金纳米颗粒的电子激发到较高的SPR态,该能态高于ZnO导带底,电子从SPR态转移至导带从而使得导电

图7 (网络版彩色)金属等离激元增强的ZnO微腔激光。(a)在不同激光激励下微腔的激光光谱图,插图为325和532 nm波长的两束光激发Au/ZnO微米棒示意图^[83]; Copyright © 2018 Royal Society of Chemistry。(b) Au/ZnO微腔中能量耦合和等离激元辅助电子转移的示意图^[82]。(c) Pt NPs修饰前后ZnO微腔的激光光谱图; (d) Pt/ZnO微腔中能量耦合和电子转移的示意图^[58]。Copyright © 2017 Springer Nature

Figure 7 (Color online) Metal plasmon enhanced ZnO microcavity lasing. (a) Lasing spectra with the different excitation in Au/ZnO microrod. The inserted images the schematic diagram of Au/ZnO microrod with 325 and 532 nm laser excitation^[83]. Copyright © 2018 Royal Society of Chemistry. (b) The schematic diagram of the energy coupling and plasmon-assisted electron transfer in Au/ZnO microcavity^[82]. (c) The comparison of emission spectra of ZnO microcavity before and after the decoration of Pt NPs. (d) The schematic diagram of the energy coupling and electron transfer in Pt/ZnO microcavity^[58]. Copyright © 2017 Springer Nature

子密度增加, ZnO紫外发射被增强. 如图7(a), (b)所示, 为了验证上述机理, 通过引入第二束绿光作为额外的激发光源, 实现了由绿光导致的ZnO紫外激光增强, 这充分验证了Au增强ZnO紫外发光的机理^[83]. 另外, 本课题组^[55]还利用Pt纳米颗粒的LSP耦合提高了入射光的激发效率, 表明Pt纳米粒子的修饰不但增强了ZnO微梳的自发辐射和受激辐射, 而且还抑制ZnO微米梳的缺陷发光, 成功增强了ZnO微腔的单模激光, 如图7(c)所示. 这是由于Pt纳米粒子的费米能级与ZnO的缺陷能级之间的电子转移导致缺陷发光的抑制, 进一步改善了ZnO微梳激光模式的强度、边模抑制比和激光阈值等性能(图7(d)). 与Pt纳米粒子的SPR增强机理不同, 由于Al纳米颗粒在紫外区域与短波长入射光具有强烈耦合的卓越性能, 我们构建了ZnO与金属Al纳米粒子的复合微腔, 明显提高了ZnO WGM激光输出并同时降低了激光阈值^[84,85], 如图8(a)所示.

除金属外, 石墨烯独特的二维构造、能带结构及其表面等离激元效应也是近几年一个新的研究热点. 人们已从理论上预言了石墨烯SP在紫外、红外及THz波段的存在^[88-90]. 如果将石墨烯的SP耦合于半导体之中, 则将给器件设计和性能调控带来极大的灵活性. 2010年, Hwang等人^[91]制备了石墨烯/ZnO薄膜的复合结构, 当激发产生的石墨烯表面等离激元转变为传播的光子时, 引起ZnO的荧光增强, 并揭示了SP色散关系, 证明了石墨烯等离激元的共振激发及其对ZnO光致发光的贡献. 利用石墨烯表面等离激元不仅能增强ZnO的紫外荧光, 还可以显著增强ZnO的紫外激光. 本课题组^[92]利用单层石墨烯包覆ZnO微米带, 构建了石墨烯/ZnO微米带复合微腔, 实现了高质量的F-P模式激光输出. 研究表明, 在石墨烯/ZnO界面处产生石墨烯表面等离激元和ZnO光场的交叠区, 该区域为石墨烯表面等离激元和ZnO光场提供了一个产生耦合相互作用

图 8 (网络版彩色)基于表面等离激元效应的ZnO微腔激光调控. (a) Al纳米颗粒增强ZnO微腔受激辐射光谱^[85]. Copyright © 2014 American Chemical Society. (b) 石墨烯表面等离激元引起的光场限域和WGM激光增强^[86]. Copyright © 2014 American Chemical Society. (c) ZnO、Al/ZnO、石墨烯/Al/ZnO三种样品受激辐射谱, 插图为3种样品结构示意图; (d) ZnO与Al和石墨烯表面等离激元协同增强机理图^[87]. Copyright © 2017 Springer Nature

Figure 8 (Color online) Lasing regulation of ZnO microcavity based on surface plasmon effect. (a) The lasing spectra for Al nanoparticles enhance ZnO microcavity excited radiation^[85]. Copyright © 2014 American Chemical Society. (b) Optical field limiting and WGM laser enhancement by surface plasmon of graphene^[86]. Copyright © 2014 American Chemical Society. (c) The lasing spectra of ZnO, Al/ZnO, graphene/Al/ZnO. The inserted image is the schematic diagram of three samples. (d) The mechanism diagram of surface plasmon synergistic enhancement of ZnO, Al and graphene^[87]. Copyright © 2017 Springer Nature

的场所.二者之间的相互作用调制了ZnO微腔内的光子振荡及光场能量分布,使得复合微腔具有较高的发光强度和更高的激光品质.进一步,我们利用高质量单层石墨烯包覆ZnO微米棒,构建了石墨烯/ZnO微米棒复合微腔,如图8(b)所示.利用石墨烯表面等离子激元显著的限域效应和高度的场增强效应提升了ZnO激光的品质,并揭示了石墨烯表面等离子激元对ZnO微米棒的耦合作用及其相互作用的动力学过程,为研究石墨烯表面等离子激元在紫外区域的响应提供了直接而有力的支撑^[86].在此基础上,利用石墨烯表面等离子激元对光场的限域效应,大大降低了ZnO纳米腔的光学损耗,结合石墨烯表面等离子激元与ZnO光场的耦合,显著提升了亚波长直径微腔的单模激光性能,具体表现为激光品质因子的大幅提升(从400增加到1500)、激光强度的显著增加(强度大约增加了4倍)以及激射阈值的明显降低(从800下降到600 kW/cm²)^[40].

由此可见,利用合适金属、石墨烯材料的高度光场限域和近场增强特性,能够有效提升ZnO材料本征发光效率,并能够设计和构建基于半导体材料复合金属纳米结构和石墨烯的新型光电子器件.单层石墨烯不仅提供了一个载流子传输的理想通道,也是金属纳米颗粒的载体.这为结合石墨烯和金属纳米颗粒的表面等离子激元协同效应提供了一个有效的方法,并可进一步提高ZnO激光性能.2013年,Liu等人^[93]报道了在单层石墨烯/Au/ZnO微米线复合结构中其PL发光性能增强了3倍,Au纳米颗粒具有使ZnO微米线表面粗化作用,使石墨烯表面等离子激元更容易耦合ZnO增强发光.本课题组^[87]则利用石墨烯SPP效应与Al纳米颗粒的局域表面等离子激元效应的协同作用,构建石墨烯/Al/ZnO复合微腔,进一步使ZnO微米棒受激辐射增强了几十倍,如图8(c)所示.该复合结构中,Al纳米颗粒不仅是作为一种LSP源,而且还使ZnO表面粗化并调节光场与石墨烯等离子激元相匹配.如图8(d)所示,Al纳米颗粒和石墨烯表面等离子激元协同增强了ZnO微腔光场和电子振荡倏逝波的能量耦合,进一步提高了WGM复合微腔的自发辐射和受激辐射,其协同耦合过程同样在Al纳米颗粒和石墨烯/Al的吸收谱中得到了验证.

综上所述,金属与石墨烯表面等离子激元奇特的物理效应可以大大降低ZnO微腔的光学损耗,有效提升增益.如果能够充分利用WGM微腔光场和表面等离子激元都集中于界面附近形成充分耦合的物理优势,又能使ZnO紫外增益为SP的短波响应提供高效补偿,可设

计和构建ZnO基新型光电子器件.

4.2 基于SPP效应的纳米腔激光模式调控

近年来,随着表面等离子激元理论研究的不断深入,利用其高度的空间局域性和近场增强特性,可以突破衍射极限,为实现纳米尺度的激光器件提供有力的科学支撑.2008年,Zhang课题组^[94]提出了一种低损耗深亚波长光传输的新方法,通过控制介质-金属界面的SPP与介质圆柱基模的杂化,可以同时实现亚波长约束和长程传播.这种新的混合波导优于其他等离子体波导,可以实现高增益半导体材料和等离子体的集成,可应用于亚波长器件,以及光学集成电路中.随后,他们又报道了Ag-SPP耦合CdS纳米线^[95]和纳米薄片^[96]的绿光激射.该方法引起了很多研究者的兴趣,并取得了许多重要的进展.Katz课题组^[97]利用复杂的微加工技术制备了金属-半导体复合同轴结构,获得了InGaAsP纳米柱在红外通信波长附近的受激辐射.Xiong课题组^[98]则利用Burstein-Moss效应对Au-SP耦合的CdS纳米线激光实现了483~504 nm范围内的波长调节,随后他们又利用Al-SPP耦合的GaN纳米线实现了紫外波段的等离子体激光^[99].

2014年,Sidiropoulos等人^[100]利用ZnO纳米线与金属Ag薄膜构建了SPP耦合的复合激光微腔,实现了亚波长尺度紫外波段的受激辐射.相较于传统ZnO纳米棒激射,这种复合结构微腔的受激辐射峰出现了明显的蓝移现象.本课题组^[101]也发现了该现象,并从激射理论模式、激射域值、激射峰位、激子动力学等多个方面与单根ZnO纳米棒光子激光器进行了对比分析,如图9所示.该发光峰为表面等离子激元与波导模式的杂化模式,揭示了SPPs模在这种复合结构腔体的激射行为中扮演了至关重要的作用.Lu课题组^[102]则利用Ag-SPP耦合的ZnO纳米棒实现了模式结构清晰的等离子体激射,如图10(a)所示.这种复合微腔的激子复合速率明显提升,其珀塞尔(Puecell)因子高达20.4,表明Ag-SPP的引入促进了电子从导带向价带跃迁.之后,他们又发现在亚波长金属Ag光栅与ZnO纳米棒结合的纳米激光器上,可以实现伪楔形(pseudowedge)SPP模式^[103].如图10(b)所示,伪楔形SPP纳米激光器有效模体积比平面SPP纳米激光器小100倍,群速度是光速的1/165,自发辐射因子可高达0.8,真正实现了模态体积小,Puecell因子大,群速度慢的纳米激光器.另外,他们还通过平衡波导束缚因子与传播长度之间的关系,获得了相

图9 (网络版彩色)ZnO等离子体纳米激光器。(a) Ag/SiO₂/ZnO纳米棒结构等离子体激光器示意图,插图显示了ZnO纳米棒的等离子体激光照片;(b) 激光偏振示意图及径向和轴向方向电场分布图;光子激光器和等离子体激光器的受激辐射谱和阈值曲线图(c)及时间分辨光谱(d)^[101]。

Copyright © 2017 American Chemical Society

Figure 9 (Color online) ZnO plasmonic nanolaser. (a) Schematic diagram of the Ag/SiO₂/ZnO nanorods plasmonic laser. The insert image shows a picture of a lasing plasmonic ZnO nanorod. (b) The lasing spectra polarization and the calculated electric field distribution of radial and axial direction. The stimulated radiation spectrum, threshold curve (c) and time-resolved spectrum (d) of plasmonic and photonic nanolaser^[101]. Copyright © 2017 American Chemical Society

对较低阈值的Al基的纳米激光器^[104,105]。如图10(c)所示,为了追求更低阈值的纳米激光器,他们又构建了ZnO/石墨烯/绝缘层/金属层(GIM)的结构,可以修正SPP色散特性并消除金属固定等离子体特性的限制^[106]。由于费米能级的差异,石墨烯的加入会改变金属表面的电子密度,使GIM结构中Al表面的电子密度增大,导致Al的等离子体频率蓝移。与之相对应,Al基GIM结构上的ZnO纳米线激光的阈值降低了50%,而Ag基的GIM结构则表现完全相反的效果(图10(d))。

SPP效应与半导体纳米腔的结合不仅尺寸上打破了衍射极限,而且从强度、阈值、模式体积上调控了激光模式,为未来追求阈值更低、强度更强、模式体积更小的纳米激光器提供了更多理论基础和参考价值。

5 总结与展望

ZnO紫外激光器在微纳光电集成、光通信、高灵

敏探测等实际应用领域中有着广阔的应用前景,而实现ZnO微腔激光模式的有效调控将是长期主题之一。利用DBR或DFB结构、腔体尺寸控制、游标效应等诸多传统方式虽已实现了ZnO微腔激光模式的有效调控,并获得单模激光输出。但这些传统方法仅适用于预先设计的微腔结构,或需高度依赖于复杂的微加工技术,而减小腔的尺寸会抑制光增益的获取,导致光损耗及激光阈值的增加。此外,这些模式调控不具备可逆性。为了解决这些问题,人们引入了多种物理效应及有效手段。通过引入表面等离激元这种新的物理效应,可使ZnO微腔光场得到更好的限域,从而有效提高了微腔增益、降低激射阈值。利用压电、电光等物理效应能有效调控ZnO的折射率,实现了在外加应力、外加电场作用下的ZnO微腔激光模式的动态调控。另外,SPP效应与ZnO纳米腔的结合不仅尺寸上打破了激光器的衍射极限,而且从强度、阈值、模式体积上调控

图 10 (网络版彩色)SPP耦合的ZnO纳米激光器. (a) ZnO/SiO₂/Ag复合结构在不同功率下的受激辐射谱、阈值曲线图(插图)和光谱半高宽图(插图)^[102]. Copyright © 2015 American Chemical Society. (b) 亚波长金属Ag光栅与ZnO纳米棒结合的纳米激光器受激辐射谱, 插图为该激光模式电场分布图^[103]. Copyright © 2015 American Chemical Society. (c) GIM结构ZnO纳米激光器的原理示意图, 插图为Al基GIM结构的电场分布图; (d) 四种结构的纳米激光器平均阈值图^[106]. Copyright © 2019 American Chemical Society

Figure 10 (Color online) SPP coupled ZnO nanolaser. (a) The stimulated radiation spectrum, threshold curve (insert), FWHM (insert) of ZnO/SiO₂/Ag structure with different excitation power^[102]. Copyright © 2015 American Chemical Society. (b) The stimulated radiation spectrum of Ag grating/ZnO nanorod structure. The insert image shows the electric field distribution of the laser mode^[103]. Copyright © 2015 American Chemical Society. (c) Schematic diagram of the ZnO SPP nanolaser on the GIM structure. The insert image shows the electric field distribution of GIM structure with the Al template. (d) Average threshold quarter box chart of four nanolasers^[106]. Copyright © 2019 American Chemical Society

了激光模式, 为未来追求阈值更低、强度更强、模式体积更小的纳米激光器提供了更多理论基础和参考价值。

虽然ZnO微腔激光模式调控方面的研究工作正不

断取得进展, 但在走向实际应用前, 就如何实现激光模式调控的可控性、重复性及规范化等方面还面临一些挑战。因此, 要求我们从实际应用角度出发, 不断完善现有机理, 从各个角度去验证新的理论。

参考文献

- Segawa Y, Ohtomo A, Kawasaki M, et al. Growth of ZnO thin film by laser MBE: Lasing of exciton at room temperature. *Phys Stat Sol (b)*, 1997, 202: 669–672
- Bagnall D M, Chen Y F, Zhu Z, et al. Optically pumped lasing of ZnO at room temperature. *Appl Phys Lett*, 1997, 70: 2230–2232
- Tang Z K, Wong G K L, Yu P, et al. Room-temperature ultraviolet laser emission from self-assembled ZnO microcrystallite thin films. *Appl Phys Lett*, 1998, 72: 3270–3272
- Cao H, Zhao Y G, Ho S T, et al. Random laser action in semiconductor powder. *Phys Rev Lett*, 1999, 82: 2278–2281
- Huang M H, Mao S, Feick H, et al. Room-temperature ultraviolet nanowire nanolasers. *Science*, 2001, 292: 1897–1899
- Greene L E, Law M, Tan D H, et al. General route to vertical ZnO nanowire arrays using textured ZnO seeds. *Nano Lett*, 2005, 5: 1231–1236
- Xu S, Qin Y, Xu C, et al. Self-powered nanowire devices. *Nat Nanotechnol*, 2010, 5: 366–373
- Newton M C, Leake S J, Harder R, et al. Three-dimensional imaging of strain in a single ZnO nanorod. *Nat Mater*, 2010, 9: 120–124

- 9 Wang Q, Yan Y, Zeng Y, et al. Free-standing undoped ZnO microtubes with rich and stable shallow acceptors. *Sci Rep*, 2016, 6: 27341
- 10 Nie Y, Wang Z, Wang J, et al. Synthesis and structure-dependent optical properties of ZnO nanocomb and ZnO nanoflag. *J Phys Chem C*, 2017, 121: 26076–26085
- 11 Xu C X, Sun X W, Dong Z L, et al. Nanostructured single-crystalline twin disks of zinc oxide. *Cryst Growth Des*, 2007, 7: 541–544
- 12 Dai J, Xu C X, Zheng K, et al. Whispering gallery-mode lasing in ZnO microrods at room temperature. *Appl Phys Lett*, 2009, 95: 241110
- 13 Yang Y, Wang G, Li X. Water molecule-induced stiffening in ZnO nanobelts. *Nano Lett*, 2011, 11: 2845–2848
- 14 Hsu H C, Wu C Y, Hsieh W F. Stimulated emission and lasing of random-growth oriented ZnO nanowires. *J Appl Phys*, 2005, 97: 064315
- 15 Chen Y L, Chen C L, Lin H Y, et al. Enhancement of random lasing based on the composite consisting of nanospheres embedded in nanorods template. *Opt Express*, 2009, 17: 12706–12713
- 16 Zhu H, Shan C X, Yao B, et al. Ultralow-threshold laser realized in zinc oxide. *Adv Mater*, 2009, 21: 1613–1617
- 17 Liu X Y, Shan C X, Wang S P, et al. Electrically pumped random lasers fabricated from ZnO nanowire arrays. *Nanoscale*, 2012, 4: 2843–2846
- 18 Ding M, Zhao D, Yao B, et al. The ultraviolet laser from individual ZnO microwire with quadrate cross section. *Opt Express*, 2012, 20: 13657–13662
- 19 Zhang J Y, Zhang Q F, Deng T S, et al. Electrically driven ultraviolet lasing behavior from phosphorus-doped p-ZnO nanonail array/n-Si heterojunction. *Appl Phys Lett*, 2009, 95: 211107
- 20 Chu S, Wang G, Zhou W, et al. Electrically pumped waveguide lasing from ZnO nanowires. *Nat Nanotechnol*, 2011, 6: 506–510
- 21 Dong H, Sun S, Sun L, et al. Thermodynamic-effect-induced growth, optical modulation and UV lasing of hierarchical ZnO Fabry-Pérot resonators. *J Mater Chem*, 2012, 22: 3069
- 22 Chen R, Ling B, Sun X W, et al. Room temperature excitonic whispering gallery mode lasing from high-quality hexagonal ZnO microdisks. *Adv Mater*, 2011, 23: 2199–2204
- 23 Czekalla C, Sturm C, Schmidt-Grund R, et al. Whispering gallery mode lasing in zinc oxide microwires. *Appl Phys Lett*, 2008, 92: 241102
- 24 Dai J, Xu C X, Ding R, et al. Combined whispering gallery mode laser from hexagonal ZnO microcavities. *Appl Phys Lett*, 2009, 95: 191117
- 25 Zhu G P, Xu C X, Zhu J, et al. Two-photon excited whispering-gallery mode ultraviolet laser from an individual ZnO microneedle. *Appl Phys Lett*, 2009, 94: 051106
- 26 Dai J, Xu C X, Shi Z L, et al. Three-photon absorption induced whispering gallery mode lasing in ZnO twin-rods microstructure. *Opt Mater*, 2011, 33: 288–291
- 27 Zhu G, Xu C, Cai L, et al. Lasing behavior modulation for ZnO whispering-gallery microcavities. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2012, 4: 6195–6201
- 28 Dai J, Xu C X, Sun X W. ZnO-microrod/p-GaN heterostructured whispering-gallery-mode microlaser diodes. *Adv Mater*, 2011, 23: 4115–4119
- 29 Pauzauskis P J, Sirbuly D J, Yang P. Semiconductor nanowire ring resonator laser. *Phys Rev Lett*, 2006, 96: 143903
- 30 Zimmeler M A, Capasso F, Müller S, et al. Optically pumped nanowire lasers: Invited review. *Semicond Sci Technol*, 2010, 25: 024001
- 31 Bhowmik A K. Polygonal optical cavities. *Appl Opt*, 2000, 39: 3071–3075
- 32 Finger N, Schrenk W, Gornik E. Analysis of TM-polarized DFB laser structures with metal surface gratings. *IEEE J Quantum Electron*, 2000, 36: 780–786
- 33 Wright J B, Campione S, Liu S, et al. Distributed feedback gallium nitride nanowire lasers. *Appl Phys Lett*, 2014, 104: 041107
- 34 Wang D C, Zhang C, Zeng P, et al. An all-silicon laser based on silicon nanocrystals with high optical gains. *Sci Bull*, 2018, 63: 75–77
- 35 Sun S, Zhang C, Wang K, et al. Lead halide perovskite nanoribbon based uniform nanolaser array on plasmonic grating. *ACS Photon*, 2017, 4: 649–656
- 36 Hofstetter D, Bonetti Y, Giorgetta F R, et al. Demonstration of an ultraviolet ZnO-based optically pumped third order distributed feedback laser. *Appl Phys Lett*, 2007, 91: 111108
- 37 Lai Y Y, Lan Y P, Lu T C. High-temperature polariton lasing in a strongly coupled ZnO microcavity. *Appl Phys Express*, 2012, 5: 082801
- 38 Li F, Orosz L, Kamoun O, et al. Fabrication and characterization of a room-temperature ZnO polariton laser. *Appl Phys Lett*, 2013, 102: 191118
- 39 Zimmeler M A, Bao J, Capasso F, et al. Laser action in nanowires: Observation of the transition from amplified spontaneous emission to laser oscillation. *Appl Phys Lett*, 2008, 93: 051101
- 40 Li J, Lin Y, Lu J, et al. Single mode ZnO whispering-gallery submicron cavity and graphene improved lasing performance. *ACS Nano*, 2015, 9: 6794–6800
- 41 Gargas D J, Moore M C, Ni A, et al. Whispering gallery mode lasing from zinc oxide hexagonal nanodisks. *ACS Nano*, 2010, 4: 3270–3276
- 42 Ushigome R, Fujita M, Sakai A, et al. GaInAsP microdisk injection laser with benzocyclobutene polymer cladding and its athermal effect. *Jpn J Appl Phys*, 2002, 41: 6364–6369
- 43 Xu E, Zhang X, Zhou L, et al. Ultrahigh-Q microwave photonic filter with Vernier effect and wavelength conversion in a cascaded pair of active loops. *Opt Lett*, 2010, 35: 1242–1244

- 44 Xiao Y, Meng C, Wang P, et al. Single-nanowire single-mode laser. *Nano Lett*, 2011, 11: 1122–1126
- 45 Gao H, Fu A, Andrews S C, et al. Cleaved-coupled nanowire lasers. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2013, 110: 865–869
- 46 Xiao Y, Meng C, Wu X, et al. Single mode lasing in coupled nanowires. *Appl Phys Lett*, 2011, 99: 023109
- 47 Zhu H, Yu S F, Wang Q J, et al. Directional single-mode emission from coupled whispering gallery resonators realized by using ZnS microbelts. *Opt Lett*, 2013, 38: 1527–1529
- 48 Xu H, Wright J B, Luk T S, et al. Single-mode lasing of GaN nanowire-pairs. *Appl Phys Lett*, 2012, 101: 113106
- 49 Shang L, Liu L, Xu L. Single-frequency coupled asymmetric microcavity laser. *Opt Lett*, 2008, 33: 1150–1152
- 50 Huang K, Yang S, Tong L. Modeling of evanescent coupling between two parallel optical nanowires. *Appl Opt*, 2007, 46: 1429–1434
- 51 Ahmad M, Hench L L. Effect of taper geometries and launch angle on evanescent wave penetration depth in optical fibers. *Biosens Bioelectron*, 2005, 20: 1312–1319
- 52 Tong L, Gattass R R, Ashcom J B, et al. Subwavelength-diameter silica wires for low-loss optical wave guiding. *Nature*, 2003, 426: 816–819
- 53 Ren L, Wu X, Li M, et al. Ultrasensitive label-free coupled optofluidic ring laser sensor. *Opt Lett*, 2012, 37: 3873–3875
- 54 Wang Y Y, Xu C X, Jiang M M, et al. Lasing mode regulation and single-mode realization in ZnO whispering gallery microcavities by the Vernier effect. *Nanoscale*, 2016, 8: 16631–16639
- 55 Wang Y, Qin F, Lu J, et al. Plasmon enhancement for Vernier coupled single-mode lasing from ZnO/Pt hybrid microcavities. *Nano Res*, 2017, 10: 3447–3456
- 56 Fu X, Liao Z M, Liu R, et al. Strain loading mode dependent bandgap deformation potential in ZnO micro/nanowires. *ACS Nano*, 2015, 9: 11960–11967
- 57 Wei B, Zheng K, Ji Y, et al. Size-dependent bandgap modulation of ZnO nanowires by tensile strain. *Nano Lett*, 2012, 12: 4595–4599
- 58 Han X, Kou L, Lang X, et al. Electronic and mechanical coupling in bent ZnO nanowires. *Adv Mater*, 2009, 21: 4937–4941
- 59 Vedam K, Davis T A. Pressure dependence of the refractive indices of the hexagonal crystals Beryl, α -CdS, α -ZnS, and ZnO. *Phys Rev*, 1969, 181: 1196–1201
- 60 Langer D W. Temperature and pressure dependence of the index of refraction of CdS. *J Appl Phys*, 1966, 37: 3530–3532
- 61 Vedam K, Davis T A. Nonlinear variation of the refractive indices of α -quartz with pressure. *J Opt Soc Am*, 1967, 57: 1140–1145
- 62 Wang Z L, Song J. Piezoelectric nanogenerators based on zinc oxide nanowire arrays. *Science*, 2006, 312: 242–246
- 63 Wang Z. Nanopiezotronics. *Adv Mater*, 2007, 19: 889–892
- 64 Wang Z L. Piezopotential gated nanowire devices: Piezotronics and piezo-phototronics. *Nano Today*, 2010, 5: 540–552
- 65 Lu J, Xu C, Li F, et al. Piezoelectric effect tuning on ZnO microwire whispering-gallery mode lasing. *ACS Nano*, 2018, 12: 11899–11906
- 66 Lu J, Yang Z, Li F, et al. Dynamic regulating of single-mode lasing in ZnO microcavity by piezoelectric effect. *Mater Today*, 2019, 24: 33–40
- 67 Peng Y, Lu J, Peng D, et al. Dynamically modulated GaN whispering gallery lasing mode for strain sensor. *Adv Funct Mater*, 2019, 29: 1905051
- 68 Fürst J U, Strekalov D V, Elser D, et al. Naturally phase-matched second-harmonic generation in a whispering-gallery-mode resonator. *Phys Rev Lett*, 2010, 104: 153901
- 69 Petrov G I, Shcheslavskiy V, Yakovlev V V, et al. Efficient third-harmonic generation in a thin nanocrystalline film of ZnO. *Appl Phys Lett*, 2003, 83: 3993–3995
- 70 Qasymeh M, Cada M, Ponomarenko S A. Quadratic electro-optic kerr effect: Applications to photonic devices. *IEEE J Quantum Electron*, 2008, 44: 740–746
- 71 Ilchenko V S, Savchenkov A A, Matsko A B, et al. Nonlinear optics and crystalline whispering gallery mode cavities. *Phys Rev Lett*, 2004, 92: 043903
- 72 Fujiwara H, Niyuki R, Sasaki K. White light induced photo-thermal switching in a graphene-flake-mixed ZnO nanoparticle random laser. *J Phys Commun*, 2018, 2: 035022
- 73 Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W. Surface plasmon subwavelength optics. *Nature*, 2003, 424: 824–830
- 74 Kelly K L, Coronado E, Zhao L L, et al. The optical properties of metal nanoparticles: The influence of size, shape, and dielectric environment. *J Phys Chem B*, 2003, 107: 668–677
- 75 Lai C W, An J, Ong H C. Surface-plasmon-mediated emission from metal-capped ZnO thin films. *Appl Phys Lett*, 2005, 86: 251105
- 76 Ni W H, An J, Lai C W, et al. Emission enhancement from metallodielectric-capped ZnO films. *J Appl Phys*, 2006, 100: 026103
- 77 Liu K W, Tang Y D, Cong C X, et al. Giant enhancement of top emission from ZnO thin film by nanopatterned Pt. *Appl Phys Lett*, 2009, 94: 151102
- 78 Cheng C W, Sie E J, Liu B, et al. Surface plasmon enhanced band edge luminescence of ZnO nanorods by capping Au nanoparticles. *Appl Phys Lett*, 2010, 96: 071107
- 79 Zhang Y, Li X, Ren X. Effects of localized surface plasmons on the photoluminescence properties of Au-coated ZnO films. *Opt Express*, 2009, 17: 8735–8740

- 80 Lin Y, Li J, Xu C, et al. Localized surface plasmon resonance enhanced ultraviolet emission and F-P lasing from single ZnO microflower. *Appl Phys Lett*, 2014, 105: 142107
- 81 Wang Y, Xu C, Li J, et al. Improved whispering-gallery mode lasing of ZnO microtubes assisted by the localized surface plasmon resonance of Au nanoparticles. *Sci Adv Mater*, 2015, 7: 1156–1162
- 82 Zhu Q, Lu J, Wang Y, et al. Burstein-Moss effect behind Au surface plasmon enhanced intrinsic emission of ZnO microdisks. *Sci Rep*, 2016, 6: 36194
- 83 Qin F F, Xu C X, Zhu Q X, et al. Extra green light induced ZnO ultraviolet lasing enhancement assisted by Au surface plasmons. *Nanoscale*, 2018, 1: 623–627
- 84 Lu J F, Zhu Q X, Zhu Z, et al. Plasmon-mediated exciton-phonon coupling in a ZnO microtower cavity. *J Mater Chem C*, 2016, 4: 7718–7723
- 85 Lu J F, Xu C X, Dai J, et al. Plasmon-enhanced whispering gallery mode lasing from hexagonal Al/ZnO microcavity. *ACS Photon*, 2014, 2: 73–77
- 86 Li J, Xu C, Nan H, et al. Graphene surface plasmon induced optical field confinement and lasing enhancement in ZnO whispering-gallery microcavity. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2014, 6: 10469–10475
- 87 Zhu Q, Qin F, Lu J, et al. Synergistic graphene/aluminum surface plasmon coupling for zinc oxide lasing improvement. *Nano Res*, 2017, 10: 1996–2004
- 88 Gao W, Shu J, Qiu C, et al. Excitation of plasmonic waves in graphene by guided-mode resonances. *ACS Nano*, 2012, 6: 7806–7813
- 89 Mak K F, Ju L, Wang F, et al. Optical spectroscopy of graphene: From the far infrared to the ultraviolet. *Solid State Commun*, 2012, 152: 1341–1349
- 90 Chen J, Zeng Y, Xu X, et al. Plasmonic absorption enhancement in elliptical graphene arrays. *Nanomaterials*, 2018, 8: 175
- 91 Hwang S W, Shin D H, Kim C O, et al. Plasmon-enhanced ultraviolet photoluminescence from hybrid structures of graphene/ZnO films. *Phys Rev Lett*, 2010, 105: 127403
- 92 Li J T, Jiang M M, Xu C X, et al. Plasmon coupled Fabry-Perot lasing enhancement in graphene/ZnO hybrid microcavity. *Sci Rep*, 2015, 19: 9263
- 93 Liu R, Fu X W, Meng J, et al. Graphene plasmon enhanced photoluminescence in ZnO microwires. *Nanoscale*, 2013, 5: 5294–5298
- 94 Oulton R F, Sorger V J, Genov D A, et al. A hybrid plasmonic waveguide for subwavelength confinement and long-range propagation. *Nat Photon*, 2008, 2: 496–500
- 95 Oulton R F, Sorger V J, Zentgraf T, et al. Plasmon lasers at deep subwavelength scale. *Nature*, 2009, 461: 629–632
- 96 Ma R M, Oulton R F, Sorger V J, et al. Room-temperature sub-diffraction-limited plasmon laser by total internal reflection. *Nat Mater*, 2011, 10: 110–113
- 97 Khajavikhan M, Simic A, Katz M, et al. Thresholdless nanoscale coaxial lasers. *Nature*, 2012, 482: 204–207
- 98 Liu X, Zhang Q, Yip J N, et al. Wavelength tunable single nanowire lasers based on surface plasmon polariton enhanced Burstein-Moss effect. *Nano Lett*, 2013, 13: 5336–5343
- 99 Zhang Q, Li G, Liu X, et al. A room temperature low-threshold ultraviolet plasmonic nanolaser. *Nat Commun*, 2014, 5: 4953
- 100 Sidiropoulos T P H, Röder R, Geburt S, et al. Ultrafast plasmonic nanowire lasers near the surface plasmon frequency. *Nat Phys*, 2014, 10: 870–876
- 101 Lu J, Jiang M, Wei M, et al. Plasmon-induced accelerated exciton recombination dynamics in ZnO/Ag hybrid nanolasers. *ACS Photon*, 2017, 4: 2419–2424
- 102 Chou Y H, Chou B T, Chiang C K, et al. Ultrastrong mode confinement in ZnO surface plasmon nanolasers. *ACS Nano*, 2015, 9: 3978–3983
- 103 Chou Y H, Hong K B, Chang C T, et al. Ultracompact pseudowedge plasmonic lasers and laser arrays. *Nano Lett*, 2018, 18: 747–753
- 104 Chou Y H, Hong K B, Chung Y C, et al. Metal for plasmonic ultraviolet laser: Al or Ag? *IEEE J Sel Top Quantum Electron*, 2017, 23: 1–7
- 105 Chou Y H, Wu Y M, Hong K B, et al. High-operation-temperature plasmonic nanolasers on single-crystalline aluminum. *Nano Lett*, 2016, 16: 3179–3186
- 106 Li H, Li J H, Hong K B, et al. Plasmonic nanolasers enhanced by hybrid grapheme-insulator-metal structures. *Nano Lett*, 2019, 19: 5017–5024

Summary for “氧化锌微腔激光的模式调控”

Lasing mode regulation in zinc oxide microcavity

Zengliang Shi¹, Ru Wang¹, Wei Liu¹, Junfeng Lu², Xiaoxuan Wang¹ & Chunxiang Xu^{1*}

¹ State Key Laboratory of Bioelectronics, School of Biological Science and Medical Engineering, Southeast University, Nanjing 210096, China;

² College of Science, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 211106, China

* Corresponding author, E-mail: xcxseu@seu.edu.cn

As a short-wave optoelectronic device, ultraviolet (UV) nano laser has a broad prospect in the fields of electronics, information, communication, environmental monitoring and biomedical testing. Zinc oxide (ZnO) microcavities show significant advantages in the realization of UV laser with low threshold and high quality factor. Resonance mode regulation and single-mode realization are the key problems for the practical application in ZnO microcavity UV laser. Based on the basic theory of microcavity mode, this paper reviews the progress of lasing mode regulation of ZnO microcavity according to different regulation mechanisms. Firstly, the important progress of traditional static regulated methods, such as cavity structure control and vernier effect, in the lasing mode effective regulation of ZnO microcavity is discussed. Secondly, the dynamic regulation of lasing mode in ZnO microcavity is realized by modulating effective refractive index through piezoelectric or electro-optic physical effects. Finally, the latest progress of surface plasmon effect in the realization of micro and nano cavity laser regulation is summarized. Many traditional methods, with the construction of distributed Bragg reflector (DBR) or distributed feedback (DFB) structure, cavity size control, vernier effect and so on, have been used to realize the lasing mode effective regulation and single-mode-lasing output of ZnO microcavity. However, these traditional methods are only suitable for the pre-designed microcavity structure, and they are highly dependent on the complex micro processing technology. Reducing the size of the cavity will inhibit the acquisition of optical gain, resulting in the increase of optical loss and laser threshold. In addition, these mode regulations are not reversible. In order to solve these problems, many scholars have taken various effective measures. The introduction of surface plasmon, a new physical effect, can make the optical field of ZnO microcavity get better confinement, so as to improve the microcavity gain and reduce the lasing threshold. Based on piezoelectric effect or electro-optic effect, the effective refractive index of ZnO can be regulated, and the dynamic regulation of ZnO microcavity mode can be realized by introducing external stress or external electric field. In addition, the combination of surface plasmon and ZnO nanocavity not only breaks the diffraction limit in size, but also regulates the laser mode in intensity, threshold and mode volume, which provides more theoretical basis and reference value for the future pursuit of nano laser with lower threshold, stronger intensity and smaller mode volume. These methods are not only suitable for ZnO UV laser, but also provide reference for other materials and other band microcavity laser.

zinc oxide, microcavity, ultraviolet laser, mode regulation, whispering-gallery mode

doi: [10.1360/TB-2019-0685](https://doi.org/10.1360/TB-2019-0685)