

基于混合波导-表面等离子极化激元结构的 胶体量子点放大自发发射性能研究

于浩^{1,2}, 王垒^{3*}, 赵永生⁴, 张文添^{1,2}, 王斌^{1,2}, 姚鑫鑫^{1,2},
张克玲^{1,2}, 吕营¹, 王铁男¹, 郭晓阳^{1*}, 申怀彬³, 刘星元¹

(1. 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所 特种发光科学与技术全国重点实验室, 吉林 长春 130033;

2. 中国科学院大学, 北京 100049;

3. 河南大学, 纳米科学与材料工程学院, 特种功能材料教育部重点实验室, 河南 开封 475004;

4. 吉林省杨天光电有限公司, 吉林 长春 130102)

摘要: 基于表面等离子激元受激辐射放大结构(Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation, Spaser)的纳米激光器是实现突破衍射极限的片上相干光源的重要途径。本文设计并制备了一种基于Glass/Ag/SiO₂/胶体量子点(CQDs)的混合波导-表面等离子极化激元结构,研究了绿光ZnCdSe/ZnS核壳量子点在该结构中的放大自发发射(Amplified Spontaneous Emission, ASE)性能。该结构支持高度局域化的混合波导-表面等离子极化激元模式,光场被强烈局域在超薄(~15 nm)的SiO₂间隔层中。受Purcell效应的影响,与纯CQD薄膜相比,Spaser结构中CQDs的荧光寿命显著缩短,并呈现双指数衰减特征。在光泵浦条件下,该器件实现了较低阈值的、TM偏振的ASE,阈值为86 $\mu\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$,线偏振度为0.91;阈值前后发散角明显降低。本研究揭示了混合波导-表面等离子极化激元模式对CQD的ASE特性的调控规律,为发展基于溶液法制备的、偏振可控的片上集成纳米光源提供了实验依据与物理参考。

关键词: 胶体量子点; 表面等离子激元受激辐射放大; 表面等离子极化激元; 放大自发发射

中图分类号:

文献标识码:

DOI: 10.37188/CJL.20260079

CSTR: 32170.14.CJL.20260079

Study on the Amplification of Spontaneous Emission Performance of Colloidal Quantum Dots Based on Hybrid Waveguide-Surface Plasmon Polariton Structure

YU Hao^{1,2}, WANG Lei^{3*}, Zhao Yongsheng⁴, ZHANG Wentian^{1,2}, YAO Xinxin^{1,2}, ZHANG Keling^{1,2},
LV Ying¹, WANG Tienan¹, GUO Xiaoyang^{1*}, SHEN Huaibin³, LIU Xingyuan¹

(1. State Key Laboratory of Luminescence Science and Technology, Changchun Institute of Optics,

Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

3. Key Lab for Special Functional Materials of Ministry of Education, School of Nanoscience and Materials Engineering,

Henan University, Kaifeng 475004, China;

4. YangTian Electro-Optics (Jilin) Co. Ltd., Changchun 130102, China)

* Corresponding Authors, E-mail: wanglei7869@henu.edu.cn, guoxy@ciomp.ac.cn

Abstract: Nanolasers based on the Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation (Spaser) structure are an important way to achieve breakthrough beyond the diffraction limit and to realize on-chip coherent

收稿日期: XXXX-XX-XX; 修订日期: XXXX-XX-XX

基金项目: 国家自然科学基金(62035013, 62475256); 吉林省科技发展计划项目(20260201032GX)

Supported by National Natural Science Foundation of China (62035013, 62475256); Jilin Province Science and Technology Research Project (20260201032GX)

light sources. In this paper, a hybrid waveguide-surface plasmon polariton structure based on Glass/Ag/SiO₂/colloidal quantum dots (CQDs) was designed and fabricated. The amplification of spontaneous emission (ASE) performance of green light ZnCdSe/ZnS core-shell quantum dots in this structure was studied. This structure supports a highly localized hybrid waveguide-surface plasmon polariton mode, and the optical field is strongly localized in the ultrathin (~15 nm) SiO₂ spacer layer. Influenced by the Purcell effect, compared with pure CQD films, the fluorescence lifetime of CQDs in the Spaser structure is significantly shortened and presents a double-exponential decay characteristic. Under optical pumping conditions, this device achieved a lower threshold of TM-polarized ASE, with a threshold of 86 $\mu\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$ and a linear polarization degree of 0.91; the divergence angle before and after the threshold decreased significantly. This study reveals the regulatory rules of the hybrid waveguide-surface plasmon polariton mode on the ASE characteristics of CQDs, providing experimental basis and physical reference for the development of on-chip integrated nanometer light sources based on solution-based fabrication and polarization-controllable.

Keywords: Colloidal quantum dots; Spaser; Surface plasmon polariton (SPP); Amplified spontaneous emission (ASE)

1 引 言

随着微纳光电子技术向集成化、微型化方向快速发展,突破光学衍射极限、实现高效紧凑的相干光源成为领域内的核心研究目标^[1-2]。表面等离子极化激元(Surface Plasmon Polariton, SPP)作为金属与介质界面处的集体电子振荡模式,能够将电磁能量局域在亚波长尺度,为突破传统光学限制提供了关键途径^[3-6]。在此基础上发展的表面等离子激元受激辐射放大(Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation, Spaser)激光技术,通过增益介质补偿金属损耗,实现SPP模式的受激辐射放大,为制备纳米尺度相干光源开辟了新路径^[7]。自2003年Spaser概念被首次提出以来^[8],其凭借深亚波长局域、高相干性等独特优势,在片上光源、高灵敏度传感、超分辨率成像等领域展现出广阔应用前景^[9]。

Spaser的核心架构由金属纳米结构,中间介质层以及增益介质构成。常见的增益介质包括半导体单晶纳米线和有机激光染料。然而,单晶纳米线(如CdS)通常需要高温外延生长,与互补金属氧化物半导体(Complementary Metal Oxide Semiconductor, CMOS)工艺兼容性较差^[6];而有机染料则面临光漂白严重、稳定性不足等问题。近年来,胶体量子点(Colloidal Quantum Dots, CQDs)因具有发光波长可调、光致发光量子产率(Photoluminescence Quantum Yield, PLQY)高、尺寸均一性好、且可通过溶液法低成本加工等突出优势,成为实现片上集成光源的理想增益介质^[10-12]。量子点与SPP的耦合作用可通过珀塞尔效应(Purcell)显著

调控自发辐射速率,加速载流子辐射复合,为低阈值Spaser的实现提供了物理基础^[13]。然而,金属与量子点的直接接触易导致荧光猝灭,且SPP模式的损耗调控与高效耦合仍是待解决的关键问题。

一个长期被忽视但非常重要的物理问题是:常规CQD薄膜在光泵浦下的放大自发发射(Amplified Spontaneous Emission, ASE)通常表现为TE偏振(电场平行于薄膜界面),这是因为CQD薄膜作为平板波导(Waveguide, WG),其增益最大的模式通常是TE₀模。然而,许多片上集成光源应用(如偏振敏感传感、光学互连、自旋电子学器件)需要TM偏振(电场垂直于界面)的输出。如何打破CQD薄膜ASE的常规偏振模式,实现高效TM偏振激射,是一项有待解决的课题。通过在金属层与增益介质间引入绝缘介质层的Spaser架构,既能抑制非辐射损耗,又能增强电磁场局域化程度,为提升增益介质与SPP模式的耦合效率提供了有效解决方案^[14]。更重要的是,SPP模式仅支持TM偏振激发与传输。将CQD薄膜集成于Spaser结构中,SPP模式的TM本征偏振特性有望突破传统CQD波导ASE的TE偏振限制。本文的研究动机就是利用Spaser结构实现CQD薄膜的TM偏振ASE,为片上偏振可控光源提供新途径。早期Spaser器件因金属欧姆损耗严重,室温阈值高达 $\text{GW}\cdot\text{cm}^{-2}$ 量级,低温阈值也在 $10\text{-}200\text{ MW}\cdot\text{cm}^{-2}$ 量级,极大限制了实用化。近十年通过结构优化与材料创新,阈值实现了跨越式下降。2017年Wang等报道了基于单晶CdSe纳米方块的室温Spaser,阈值降至 $10\text{ kW}\cdot\text{cm}^{-2}$ ^[15];2019年Fernan-

dez-Bravo 团队通过 Ag 纳米柱阵列实现了稀土纳米颗粒的低阈值($70 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$)上转换激光。这些研究展现了纳米相干光源的低功耗应用前景^[16]。

具体到 CQD 与平面 Spaser 架构的结合,前人虽已有初步探索。例如,Shin 等人构建了 Ag/Si₃N₄/CQD 多层膜结构,证实了 Purcell 增强效应的存在,但其工作主要聚焦于自发辐射寿命的调控,并未涉及激射或 ASE 的观测^[14]。将 CQD 与等离激元结构结合并实现激射的代表性工作 Guan 等人报道的 CQD-等离激元激光器^[17]。该工作将 CdSe-CdS 核壳 CQD 薄膜共形涂覆在 Ag 纳米粒子周期晶格上,利用混合波导-表面晶格共振模式实现了具有径向或方位角偏振的矢量光束输出。然而,该结构依赖于复杂的纳米加工工艺来制备周期晶格,且激光阈值高达 $8.5 \times 10^5 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。本文在材料体系上,我们选用了无闪烁、高 PLQY、可有效抑制荧光共振能量传递的绿光 ZnCdSe/ZnS 核壳量子点作为增益介质^[18]。另一方面,基于核壳纳米颗粒以及激光染料的 Spaser 虽已实现激光输出^[19-21],但该类结构依赖于复杂的湿化学合成与单颗粒操控,在片上大面积集成方面面临挑战。相比之下,本工作采用的平面多层膜架构保留了 CQD 溶液法成膜的低成本、大面积兼容性优势。更重要的是,我们通过精确调控 SiO₂ 间隔层厚度至 15 nm,在抑制猝灭的同时构建了强耦合的混合 WG-SPP 模式,首次在该平面体系中系统揭示了从 TE 偏振到 TM 偏振 ASE 的偏振翻转行为。

在 Spaser 结构设计中,金属与增益介质之间的间隔层(通常为低折射率介质,如 SiO₂、MgF₂)厚度是关键参数。理论和实验结果表明:间隔层越薄,SPP 模式的局域增强效应越强,Purcell 因子越大,越有利于降低阈值^[7]。然而,过薄的间隔层(例如 <10 nm)在实验上面临两大挑战:一是电子束热蒸发制备超薄介质膜时,膜层连续性急剧下降,易出现针孔缺陷,导致局部金属-量子点直接接触并引起荧光猝灭;二是过短的金属-量子点距离仍可能引入不可忽略的非辐射能量转移。因此,间隔层厚度的选择必须在强耦合与可制备性之间取得平衡。本工作参考了文献[7]中 Spaser 结构的优化结果,并结合本实验室电子束蒸镀 SiO₂ 的成膜经验,最终将 SiO₂ 厚度选定为 15 nm。该厚度既能形成致密均匀的间隔层,又可将光场强烈局域在亚

波长尺度,实现有效的 Purcell 增强。在器件结构上,设计了 Spaser 构型的 Glass/Ag/SiO₂(15 nm)/CQD 器件,实现了高度局域且损耗较低的混合 WG-SPP 模式。在实验上证明了 Spaser 构型可以彻底改变 CQD 薄膜 ASE 的偏振特性——从传统的 TE 偏振(DOLP=0.77)转变为高纯度的 TM 偏振(DOLP=0.91),为溶液法制备的片上 CQD 基纳米相干光源提供了具有实用价值的实验与理论支撑。

2 实验

2.1 样品制备

实验所用衬底采用尺寸为 18 mm×18 mm 的 k9 玻璃,厚度为 1 mm;金属 Ag 纯度为 99.99%,购自于福州英菲迅光电科技有限公司;SiO₂ 的纯度为 99.99%,购自于中诺新材(北京)科技有限公司;镉系绿光 CQD 材料(ZnCdSe/ZnS)以正辛烷为溶剂,合成方法见文献^[17]。首先对 K9 玻璃基底分别用乙醇、丙酮、异丙醇进行超声清洗 20 min,然后放置于真空干燥箱中 50 °C 烘干备用,再用乙醇:乙醚为 1:1 的混合溶液进行擦拭,最后进行 O₂ Plasma 处理 2 min。采用高真空电子束热蒸发法在室温条件下依次蒸镀 Ag 和 SiO₂ 薄膜,蒸发速率分别为 1.5~2 Å/s 和 5 Å/s,厚度分别为 100 nm 和 15 nm。在氮气手套箱中以 3000 rpm,40 s 的条件旋涂制备 CQD 层,在 80 °C,5 min 的条件进行退火处理。

2.2 性能测试

CQD 薄膜的光致发光(Photoluminescence, PL)与吸收光谱分别由 Hitachi F-7000 型荧光光谱仪和 Shimadzu UV-3101PC 型紫外-可见分光光度计测得。通过 Avantes ULS2048L 光纤光谱仪收集 PL 及 ASE 光谱。激发光源是 355 nm CryLas GmbH Nd³⁺:YAG 脉冲激光器,重复率为 50 Hz,脉冲宽度为 1 ns。使用柱面透镜将 355 nm 脉冲激光束聚焦成尺寸为 4 mm×0.2 mm 的条纹。使用中性能密度滤光片调节 355 nm 泵浦光的强度。使用 Coherent 的 EMUSBJ-10SI-HE 激光能量计测量泵浦光脉冲能量。使用 Edinburgh FLSP920 稳态瞬态荧光光谱仪测量样品的荧光寿命和 PLQY(配备积分球附件)。样品出射光的发散角通过旋转样品台并配合光纤光谱仪测量不同角度下的发光强度获得,角分辨率约为 0.5°。

3 结果与讨论

本实验制作的 Spaser 样品结构为 Glass/Ag (100 nm)/SiO₂ (15 nm)/CQD (100 nm), 同时制备了结构为 Glass/CQD (100 nm) 的 WG 样品作为参比。本文的“Spaser”特指器件构型遵循了表面等离子激元受激辐射放大的经典设计架构(即金属-隔离层-增益介质的三明治结构), 而非指代器件已实现受激辐射放大的相干激射。泵浦光经柱面透镜聚焦成条形光斑, 垂直入射至样品表面, 并从样品端面收集发射光, 结构示意图如图 1(a)所示。在 Spaser 结构中 SPP 模式在 Ag 层表面产生, CQD 薄膜的厚度约 100 nm。中间的低折射率 SiO₂ 层($n \approx 1.46$)起到双重作用: 一方面作为间隔层, 避免 CQD 与 Ag 直接接触导致的荧光猝灭; 另一方面作为低折射率介质, 促使 SPP 模式与 CQD 薄膜(n

≈ 1.9)中的 WG 模式发生强耦合。为了从理论上验证这一混合模式的形成, 我们采用基于有限元法(Finite Element Method, FEM)的 COMSOL 软件对结构进行了本征模分析。图 1(b)为原子力显微镜(Atomic Force Microscope, AFM)成像图, 显示该薄膜均匀且粗糙度较低。峰值力误差图凸显了细微的表面起伏, 无明显大尺寸团簇或针孔缺陷。良好的表面平整度对于减小散射损耗、实现低阈值器件中的高效光波导传输非常重要。图 1(c)展示了波长为 520 nm 时, 混合模式的电场强度分布。可以清晰地看到, 光场被强烈地局域在厚度仅为 15 nm 的 SiO₂ 介质层中, 形成了典型的混合 WG-SPP 模式^[6]。这种高度局域化确保了 CQD 增益介质与 SPP 模式具有较大的空间重叠, 同时避免了与金属的直接接触, 是实现低阈值 Spaser 的关键。

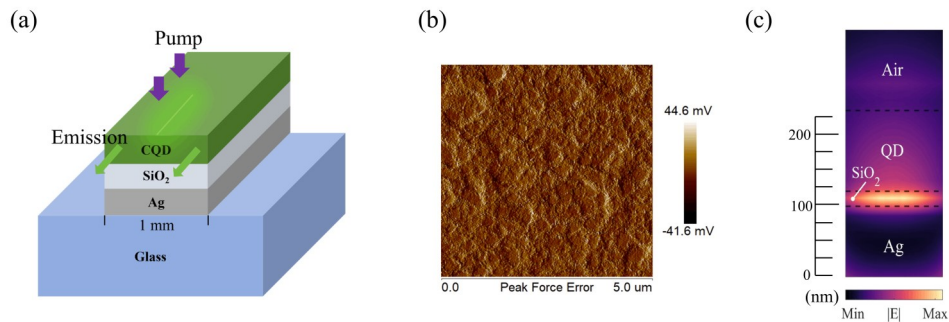


图 1 (a) Spaser 器件结构示意图; (b) CQD 薄膜的原子力显微镜图; (c) 模拟的混合模式电场强度分布图

FIG. 1 (a) Schematic diagram of the Spaser device structure. (b) AFM diagram of the CQD film. (c) Simulated electric field intensity distribution of the hybrid mode.

首先对 CQD 薄膜的本征光学性质进行了表征。从图 2(a)可以看出, 该 CQD 材料在室温下的 PL 发射峰位于 520 nm, 半高全宽(Full Width at Half Maximum, FWHM)为 26 nm, 显示出窄带发光特性, 表明 CQD 粒径具有高度的均一性。其激子吸收峰位于 510 nm 附近, 斯托克斯位移达 10 nm, 这有利于减少自吸收损耗。图 2(b)对比了作为参比的 WG 样品与 Spaser 样品的时间分辨荧光衰减曲线。其中绿色曲线为仪器响应函数(Instrument Response Function, IRF)。两个样品的衰减曲线明显长于 IRF, 证实了测量结果的可靠性。WG 样品的荧光衰减呈良好的单指数特征, 拟合得到寿命 $\tau_{\text{ref}}=8.8$ ns, 对应于 CQD 激子态的本征辐射复合速率。相比之下, Spaser 样品的衰减曲线呈现显著的双指数特征, 拟合得到快寿命成分 $\tau_1=2.0$ ns(权重 $A_1 \approx 41\%$)和慢寿命成分 $\tau_2=6.5$ ns

(权重 $A_2 \approx 59\%$), 平均寿命 $\tau_{\text{avg}}=5.7$ ns。这种双指数行为是 Purcell 效应的直接体现, 并揭示了混合 WG-SPP 模式的局域特性。其中, τ_1 (快衰减成分)对应于与混合模式发生强耦合的激子。由于混合模式在 SiO₂ 间隙中具有极高的局域态密度, 这些激子通过近场相互作用将其能量快速转移到 SPP 模式。经积分球测量, Spaser 样品的 PLQY 与 WG 样品的 PLQY 均为 90% 左右。在平均荧光寿命从 8.8 ns 显著缩短至 5.7 ns 的背景下, PLQY 保持不变, 可以明确排除金属诱导非辐射能量转移等弛豫通道, 说明辐射复合速率被显著加快。辐射复合速率的提升补偿了可能存在的轻微非辐射损耗, 从而维持了高 PLQY 的稳定。双指数衰减中的快成分(τ_1)正是近 SiO₂ 界面处与 SPP 模式强耦合激子的 Purcell 增强在动力学上的直接表现。 τ_1 的数值反映了 SPP 模式的局域场增强强度。 τ_2 (慢

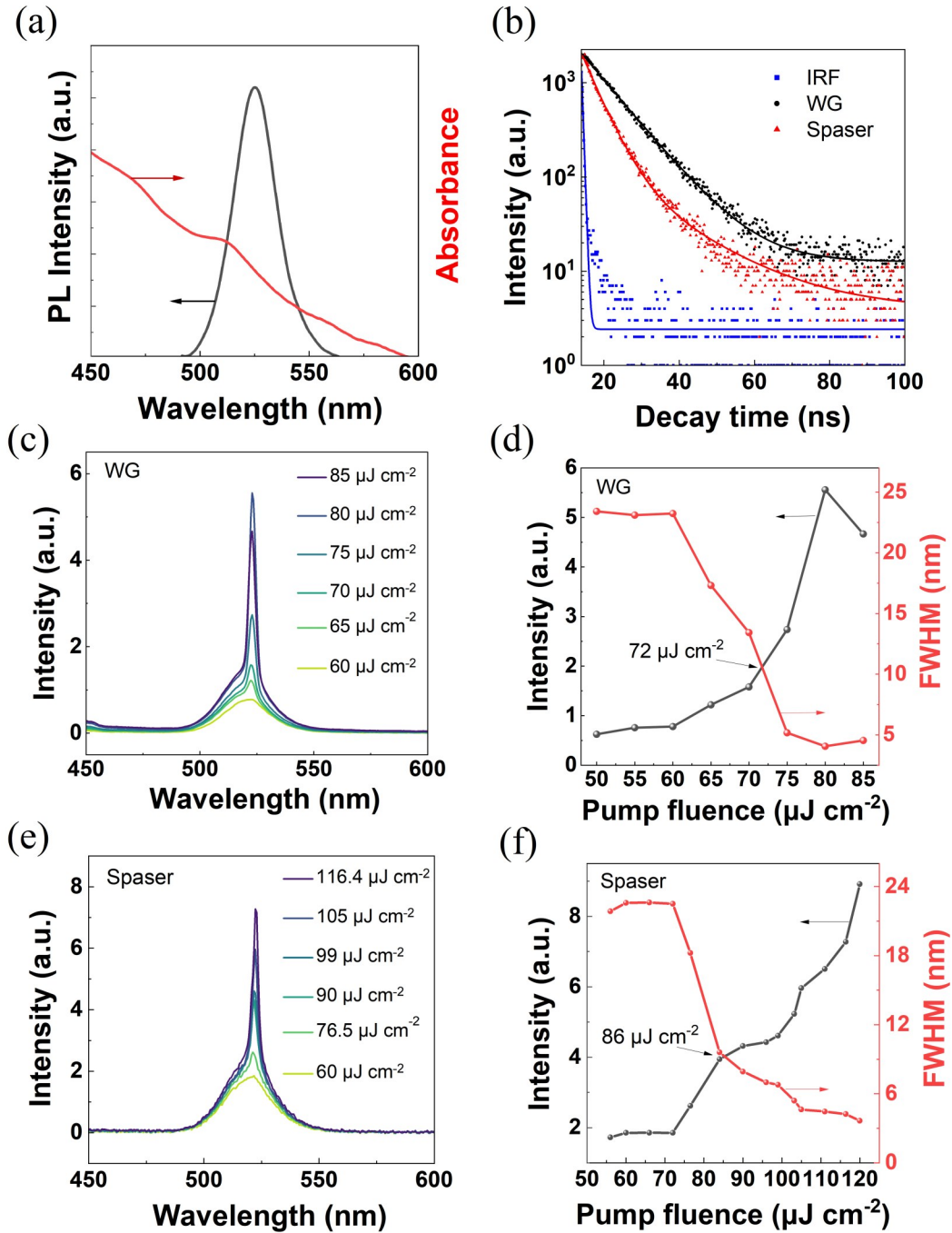


图2 (a) 量子点材料PL及吸收光谱; (b) WG与Spaser样品的时间分辨PL衰减动力学; (c) 不同泵浦能量密度下的WG样品边发射输出光谱; (d) WG样品的输出光强度和FWHM随泵浦能量密度的变化; (e) 不同泵浦能量密度下的Spaser样品边发射输出光谱; (f) Spaser样品的输出光强度和FWHM随泵浦能量密度的变化

FIG. 2 (a) PL and absorption spectra of the CQD material. (b) Time-resolved PL decay dynamics of the CQD film in WG and Spaser structure, compared with the instrument response function (IRF). (c) Edge-emission spectra of the WG sample under different pump fluence. (d) Dependence of the edge-emission output intensity and FWHM of the WG sample on the pump fluence. (e) Edge-emission spectra of the Spaser sample under different pump fluence. (f) Dependence of the edge-emission output intensity and FWHM of the Spaser sample on the pump fluence.

衰减成分)对应于与混合模式耦合较弱或位于远离Ag界面的CQD上表面的激子。这部分激子的Purcell增强较弱,其衰减速率更接近于CQD的本

征速率。双指数的存在表明了模式的高度非均匀性:只有空间上位于强场区域(即靠近SiO₂界面)的激子才能获得最大程度的辐射速率加速,这一结

果与图 1(c)中理论模拟的电场分布是吻合的。拟合权重 $A_1 \approx 41\%$ 、 $A_2 \approx 59\%$ 的分布表明,在薄膜中约 41% 比例的激子处于强场局域区,这与空间上处于近 SiO_2 界面强场的量子点比例在定性上是一致的,其余约 59% 处于弱场区(薄膜顶部),这与 CQD 层厚度(~ 100 nm)远大于场局域深度(~ 15 nm)的结构特征是吻合的。该结果从实验寿命分布上定性吻合混合模式场强沿薄膜厚度方向急剧衰减的空间非均匀特性,为模式强局域图像提供了动力学层面的支持。

图 2(c)和(e)分别展示了 WG 样品与 Spaser 样品在不同泵浦能量密度下的边发射光谱。对于 WG 样品,当泵浦能量密度低于 $60 \mu\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时,光谱呈现较宽的发光背景,源于 CQD 波导模式的自发辐射。对于 Spaser 样品,当泵浦能量密度低于 $70 \mu\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时,光谱同样呈现宽谱自发辐射特征,此时发光主要源于混合 WG-SPP 模式的自发辐射贡献。随着泵浦能量密度逐渐升高,两个样品的光谱中均在 521 nm 附近出现一个尖锐的发射峰并迅速成为主导,发射强度呈现超线性增长。图 2(d)、(f)定量分析了输出光积分强度和光谱 FWHM 随泵浦能量密度的变化。在本工作中,ASE 阈值(P_{th})被定义为输出强度曲线与 FWHM 曲线的交叉点位置。由图可知,器件阈值约为 $86 \mu\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。超过阈值之后,发射强度超线性增长,同时光谱 FWHM 从自发辐射阶段的 ~ 22 nm 窄化至 3.6 nm(约 6 倍窄化)。这种明显的拐点和线宽窄化行为,是出现 ASE 现象的典型标志。相比于图 2(d)中 WG 样品的阈值 $72 \mu\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$, Spaser 样品的阈值有所增加,这是因为存在部分金属猝灭现

象导致了器件的损耗增加。此外,作为对比试验制备的额外参比器件(Glass/Ag (80 nm)/CQD (100 nm))在相同的泵浦条件下无法实现 ASE, CQD 直接接触金属导致发光猝灭,损耗远大于增益,这进一步说明了本实验 Spaser 结构器件带来的显著优势。

表 1 比较了近年来几种绿光发光材料的 Spaser 器件的激光/ASE 性能。相较于已报道的有机染料及 InGaN/GaN 纳米板等不同增益介质的 Spaser 器件,本实验以 ZnCdSe/ZnS 胶体量子点为增益材料,基于 Spaser 结构实现了 $86 \mu\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$ (对应 $86 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$)的 ASE 阈值,高于多数有机染料体系与 InGaN/GaN 纳米板器件的阈值,实现了 3.6 nm 的半高全宽,与有机染料体系(FWHM ≈ 3 -3.8 nm)及 InGaN/GaN 纳米板器件(FWHM = 4 nm)的窄线宽水平相当。表 1 还列出了 Guan 等人报道的 CQD-等离激元激光器^[17],该工作采用 Ag 纳米粒子周期晶格+CQD 薄膜构型,实现了偏振可控的矢量光束输出,但其阈值高达 $8.5 \times 10^5 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$,且依赖于复杂的纳米加工工艺。相比之下,本工作以简单平面多层膜构型实现了低 4 个数量级的 ASE 阈值($86 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$),在工程实用性上具有明显优势,而且本实验所构建的 Spaser 构型器件在降低 ASE 阈值方面仍存在优化空间。需要指出的是,本工作观察到的现象定义为 ASE 而非 lasing。因为本工作采用的平面薄膜波导结构缺乏光学谐振腔反馈,SPP 模式在传播方向上的增益主要来源于单程放大。因此,尽管光谱 FWHM 窄化至 3.6 nm 且阈值拐点清晰,其物理本质仍属于单程增益的 ASE 现象^[19-22]。

表 1 近年相关研究对比

Table 1 Comparison of related studies in the past years

材料及结构	峰值波长 (nm) /FWHM (nm)	阈值($\text{kW} \cdot \text{cm}^{-2}$)	发散角($^\circ$)
Au@dye-SiO ₂ 核壳三级体系 spaser ^[19] (dye: 2',7'-二氟荧光素马来酰亚胺)	545 / 3	20	/
Au@Rhodamine 6G-SiO ₂ 核壳纳米颗粒 ^[20]	545 / 3.8	<20	/
Au@荧光素钠-SiO ₂ 核壳纳米颗粒 ^[21]	520 / 5 (溶液) 520 / 1 (光子晶体)	70-150	/
Substrate/SiO ₂ /Ag/SiO ₂ /GaN/InGaN nano-plate ^[22]	502 / 4	6.36	/
石英/银纳米粒子周期性晶格/CdSe-CdS 核壳 CQD ^[17]	633 / 0.4	8.5×10^5	0.5
本工作: Glass/Ag/SiO ₂ /(ZnCdSe/ZnS)	521 / 3.6	86	4

备注:因不同文献中泵浦激光器的脉冲宽度并不一致,无法对能量密度进行直接比较。为了方便比较,我们统一采用峰值功率密度进行阈值的对比。

图 3(a)分析了 WG 和 Spaser 样品在 ASE 状态下的偏振特性。结果表明, WG 样品的边发射

ASE 输出光呈现 TE 偏振占主导的部分偏振特性,线偏振度(Degree of Linear Polarization, DOLP)为

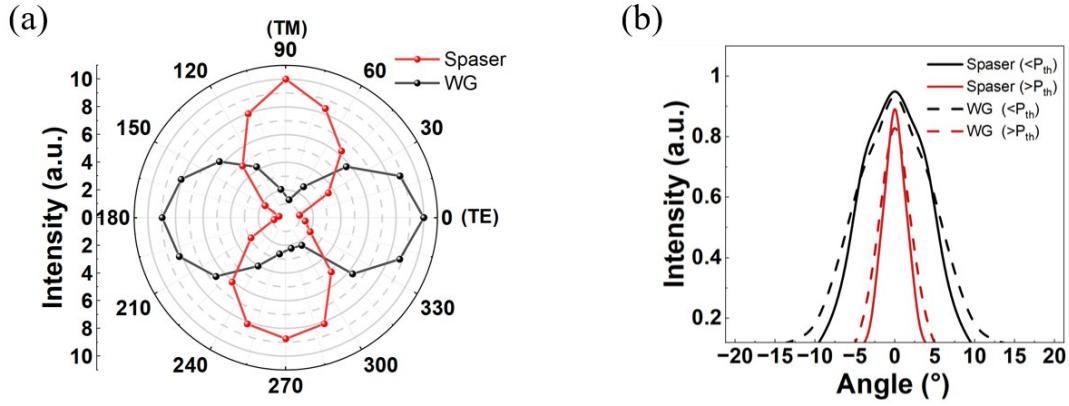


图3 (a) WG及Spaser样品的偏振特性;(b) WG及Spaser样品在阈值前后的发散角

FIG. 3 (a) Polarization characteristics of the WG and the Spaser samples. (b) Divergence angles of the WG and Spaser samples below and above the threshold.

0.77。相比之下,Spaser样品的ASE输出光具有极强的TM偏振特性,其DOLP高达0.91。结合前文图2所示的阈值数据(Spaser: $86 \mu\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$, WG: $72 \mu\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$),可以看出尽管金属Ag层的引入带来了固有的欧姆损耗,导致Spaser样品的ASE阈值较纯WG样品略有抬升(增加约19%),但该结构成功将出射光的偏振态从传统CQD波导固有的TE模式根本性翻转为高纯度的TM模式。这一独特功能是单纯介质波导结构无法实现的,它标志着Spaser构型中的混合WG-SPP模式在光场偏振调控上取得了主导权。这种高TM偏振特性是由器件的结构及混合模式的物理本质共同决定的。一方面,表面等离激元SPP模式仅支持TM偏振激发与传输;另一方面,100 nm厚的CQD有源层作为波导主要支持TE₀模式。当两者发生强耦合形成混合模式后,光场被强烈局域于15 nm厚的SiO₂间隔层中。在这一亚波长尺度的间隙内,SPP模式的TM分量占据主导地位,从而决定了输出光的高偏振度与TM取向。通过旋转样品台并记录不同角度下的发光强度,我们获得了如图3(b)所示的阈值前后样品的发散角。以光强下降至峰值一半处的角度宽度作为发散角(半高全宽)。结果表明,WG样品在阈值以下的发散角约为13°。当泵浦光强度超过阈值后,发散角减小至5°左右。Spaser样品在阈值以下的发散角约为11°。当泵浦光强度超过阈值后,发散角减小至4°左右。发散角的降低表明Spaser器件相比于WG样品具有稍高的空间相干性。尽管本实验Spaser构型并不能有效改善ASE性能,但是具有光场局域在15 nm的亚波长区域以及高度TM偏振的性能。

为进一步验证Spaser器件中WG-SPP混合模式的形成,本研究通过COMSOL本征模分析,计算了WG样品的TE₀/TM₀波导模式、Ag-SiO₂界面SPP模式以及Spaser样品的有效折射率色散曲线(图4(a)),并通过变条长法(the variable stripe length, VSL)和位移激发光斑法(Shifted Excitation Spot, SES)测试了器件的净增益系数和波导损耗系数(图4(b)、4(c))。如图4(a)所示,520 nm处Spaser样品模式的有效折射率($n_{\text{eff}} \approx 1.61$)显著高于WG样品的TE₀ ($n_{\text{eff}} \approx 1.57$)、TM₀ ($n_{\text{eff}} \approx 1.50$)模式,且低于纯SPP模式($n_{\text{eff}} \approx 1.62$),表明该模式非单一的纯波导模式或纯SPP模式,而是基于CQD层的TE波导模式和金属Ag层的SPP模式所形成的混合WG-SPP模式。混合WG-SPP模式的有效折射率位于纯SPP与纯WG模式之间,且随着波长变化呈现出偏离单一模式色散的趋势,这是WG光子模式与SPP模式强耦合形成混合模式的典型特征。SES法测试拟合得到Spaser样品的损耗系数 $\alpha=80 \text{ cm}^{-1}$ (图4(b)),高于WG样品的波导损耗系数(图4(b), $\alpha=40 \text{ cm}^{-1}$),与SPP的较大金属欧姆损耗特征吻合,且与光场在15 nm SiO₂层的强局域结果自洽,排除了普通波导模式局域增强的可能性。由图4(c)的VSL实验拟合得到WG和Spaser样品的净增益系数分别为55和50 cm^{-1} ,表明较高的损耗降低了Spaser样品的增益。尽管SPP模式引入的80 cm^{-1} 损耗高于纯波导模式的40 cm^{-1} ,但由于混合模式将光场高度局域于15 nm间隙内,模式限制因子显著增大,从而在相同的材料增益下补偿了金属损耗,最终实现了正的净增益(50 cm^{-1})。图4(d)所示为恒定泵浦能量密度($\sim P_{th}$)下WG与

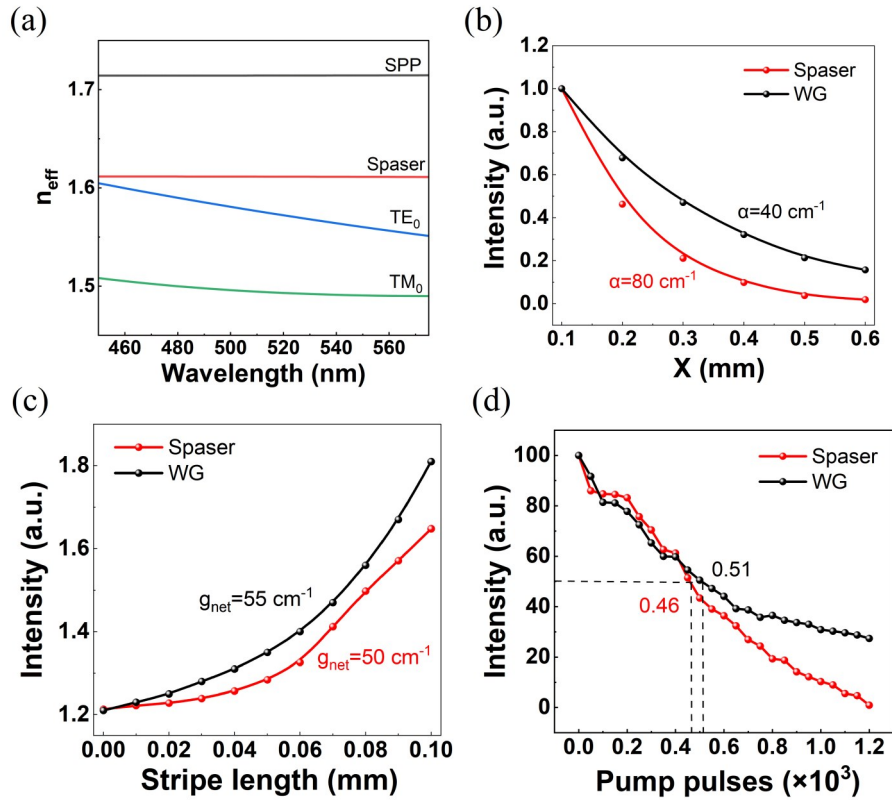


图4 (a)模拟的WG和Spaser样品的模式色散关系;(b)通过SES方法得出的发射强度与未受泵浦作用的传播距离X的关系图;(c)发射强度随泵浦条长的变化关系;(d)样品在恒定能量密度($\sim P_{th}$)泵浦下输出光强随泵浦脉冲数量的变化

FIG. 4 (a) The simulated mode dispersion relation of the WG and Spaser samples. (b) Emission intensity as a function of unpumped propagation distance X , obtained via SES method. (c) Emission intensity versus pumped stripe length L , obtained via VSL method. (d) Output intensity dependence on the number of pump pulses under a constant pump fluence ($\sim P_{th}$)

Spaser样品的ASE的工作稳定性。随着泵浦脉冲的增加,器件逐渐老化,输出光强度逐渐降低,半衰期分别为510 Hz和460 Hz。Spaser样品的半衰期稍低一些,稳定性弱于WG样品。可能的原因是样品没有封装的情况下,金属薄膜的稳定性低于介质薄膜。此外,由于SPP模式将光场强局域在Ag/SiO₂界面仅数纳米范围内,Ag层表面的任何微小化学或结构变化都会通过模式有效折射率的扰动而影响损耗,这进一步放大了未封装Ag膜环境敏感性的负面影响。

ASE的核心物理本质是受激辐射主导的自发辐射放大过程,其核心条件为增益介质的粒子数反转与光子/等离激元在增益区的有效传输引发的受激辐射累积,这是Spaser结构与传统波导结构中ASE的核心共性。二者的差异源于光场束缚的物理机制本质不同:传统波导中,光以光子模式在介质中传播;而在Spaser结构中,光与金属表

面自由电子耦合形成SPP模式。SPP的金属-介电界面束缚特性及独特色散关系,与光子模式的自由传播特性形成了二者在激发、传输、放大过程中的本质区别。本工作中观察到的双指数荧光衰减、高TM偏振特性(偏振度为0.91)、光场强局域于15 nm超薄SiO₂层以及模式损耗显著高于纯介质波导等现象均为Spaser混合模式特有。

SPP模式对ASE阈值与效率的影响遵循双重作用机制:一方面通过强场局域与Purcell效应提升自发辐射速率、增强光与物质相互作用、提高有效增益,有利于降低阈值、提升效率;另一方面金属欧姆损耗会增加总的光损耗,抬高ASE阈值并降低净增益,二者共同决定最终激光性能。在本工作的Glass/Ag/SiO₂/CQD结构中,15 nm超薄SiO₂隔离层既避免量子点与金属直接接触导致的荧光猝灭,又将光场高度局域在亚波长间隙内,使Purcell效应带来的增益提升幅度超过金属引入的

附加损耗,最终在补偿等离激元损耗后仍实现正净增益,从而获得较低的ASE阈值。

本文通过设计简单的Glass/Ag/SiO₂/CQD平面Spaser结构,在15 nm超薄隔离层中实现高度局域的混合WG-SPP模式,既抑制金属猝灭,又显著增强光与物质相互作用。与传统Spaser相比,本结构无需复杂纳米阵列加工,即可实现高TM偏振、较低阈值和较高方向性的ASE输出,为发展可溶液加工、片上集成、高性能稳定的量子点基Spaser提供有益的参考。

4 结 论

本文设计并制备了Glass/Ag/SiO₂/CQD结构的Spaser样品,研究了混合波导-表面等离极化激元模式对绿光胶体量子点ASE特性的调控作用。不同于常规依赖复杂纳米颗粒阵列提供反馈的Spaser Laser,本工作提出的平面波导Spaser架构

无需任何纳米图案化工艺,提供了一种更易大面积制备、偏振可控的ASE光源解决方案。理论模拟和实验结果表明,光场主要被局域在超薄的SiO₂间隔层中,有效增强了光与物质的相互作用。混合WG-SPP模式显著调控胶体量子点的自发辐射动力学与ASE特性,CQD的荧光寿命从本征的8.8 ns缩短至平均5.7 ns,且呈现双指数衰减特征,其中快衰减成分($\tau_1=2.0$ ns)对应于与SPP强耦合的激子。在光泵浦下,器件实现了低阈值的ASE。阈值约为86 $\mu\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$,阈值后光谱FWHM窄化至3.6 nm。输出光的线偏振度达到0.91,为TM偏振;发散角从阈值前的11°降低至阈值后的4°,显示出良好的方向性。本研究展示了胶体量子点在表面等离极化激元限制下的ASE性能,为开发基于溶液法制备的、易于集成的片上纳米相干光源提供了有益的参考,在片上光互连、高灵敏度生化传感等领域具有潜在应用价值。

参 考 文 献:

- [1] RAMEZANI M, HALPIN A, FERNÁNDEZ-DOMÍNGUEZ A I, *et al.* Plasmon-exciton-polariton lasing [J]. *Optica*, 2017, 4(1): 31-37.
- [2] HAOXUAN W, YANLIN H, HANGWEI Z, *et al.* Research progress and prospects of metasurface polarization devices [J]. *Opto-Electron Eng*, 2024, 51(8): 240095.
- [3] MELIKYAN A, LINDENMANN N, WALHEIM S, *et al.* Surface plasmon polariton absorption modulator [J]. *Opt. Express*, 2011, 19(9): 8855-8869.
- [4] JOSEPH S, SARKAR S, JOSEPH J. Grating-coupled surface plasmon-polariton sensing at a flat metal - analyte interface in a hybrid-configuration [J]. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2020, 12(41): 46519-46529.
- [5] RAWASHDEH A, WILDENBORG A, LIU E, *et al.* High-quality surface plasmon polaritons in large-area sodium nanostructures [J]. *Nano Lett.*, 2023, 23(2): 469-475.
- [6] 何庆叶, 李国辉, 潘登, 等. 表面等离激元金属-绝缘体-半导体波导激光器研究进展 [J]. *发光学报*, 2022, 43(12): 1839-1854.
HE Q Y, LI GUO H, PAN D, *et al.* Research progress of surface plasmon polariton metal-insulator-semiconductor waveguide lasers [J]. *Chinese J. Lumin.*, 2022, 43(12): 1839-1854.
- [7] Oulton R. F, Sorger V. J, Zentgraf T, *et al.* Plasmon lasers at deep subwavelength scale [J]. *Nature*, 2009, 461: 629-632.
- [8] BERGMAN D J, STOCKMAN M I. Surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation: Quantum generation of coherent surface plasmons in nanosystems [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2003, 90(2): 027402.
- [9] FLYNN R A, KIM C S, VURGAFTMAN I, *et al.* A room-temperature semiconductor spaser operating near 1.5 μm [J]. *Opt. Express*, 2011, 19(9): 8954-8961.
- [10] PARK Y S, ROH J, DIROLL B T, *et al.* Colloidal quantum dot lasers [J]. *Nat. Rev. Mater.*, 2021, 6(5): 382-401.
- [11] HAHM D, PINCHETTI V, LIVACHE C, *et al.* Colloidal quantum dots enable tunable liquid-state lasers [J]. *Nat. Mater.*, 2025, 24(1): 48-55.
- [12] 梁龙, 郑悦婷, 林立华, 等. 自浸润式纳米压印耦合实现量子点发光二极管性能提升 [J]. *发光学报*, 2024, 45(4): 613-620.
LIANG L, ZHENG Y T, LIN L H, *et al.* Improving performance of quantum dot light-emitting diode with self-immersed

- nanoimprint-coupling[J]. *Chinese J. Lumin.*, 2024, 45(4):613-620.
- [13] SEIDEL M, YANG Y, SCHUMACHER T, *et al.* Intermediate field coupling of single epitaxial quantum dots to plasmonic waveguides [J]. *Nano Lett.*, 2023, 23(22): 10532-10537.
- [14] SHIN T, CHO K S, YUN D J, *et al.* Exciton recombination, energy-, and charge transfer in single- and multilayer quantum-dot films on silver plasmonic resonators [J]. *Sci. Rep.*, 2016, 6: 26204.
- [15] WANG S, WANG X Y, LI B, *et al.* Unusual scaling laws for plasmonic nanolasers beyond the diffraction limit [J]. *Nat. Commun.*, 2017, 8(1): 1889.
- [16] FERNANDEZ-BRAVO A, WANG D, BARNARD E S, *et al.* Ultralow-threshold, continuous-wave upconverting lasing from subwavelength plasmons [J]. *Nat. Mater.*, 2019, 18(11): 1172-1176.
- [17] Guan J., Sagar L. K., Li R., *et al.* Quantum dot-plasmon lasing with controlled polarization patterns [J]. *ACS Nano* 2020, 14(3): 3426-3433.
- [18] LI Z, CHEN F, WANG L, *et al.* Synthesis and evaluation of ideal core/shell quantum dots with precisely controlled shell growth: nonblinking, single photoluminescence decay channel, and suppressed FRET [J]. *Chem. Mater*, 2018, 30(11): 3668 - 3676.
- [19] SONG P, WANG J H, *et al.* Three-level spaser for next-generation luminescent nanoprobe [J]. *Sci. Adv*, 2018, 4(8): eaat0292.
- [20] WANG J H, GAO Z S, *et al.* How gain layer design determines performance of nanoparticle-based spaser [J]. *J. Phys. Chem. C*, 2020, 124(30): 16553-16560.
- [21] PARKHOMENKO R G, KUCHYANOV A S, KNEZ M, *et al.* Lasing spaser in photonic crystals [J]. *ACS Omega*, 2021, 6(6): 4417-4422.
- [22] ZHI T, TAO T, LIU X, *et al.* Low-threshold lasing in a plasmonic laser using nanoplate InGaN/GaN [J]. *J. Semicond.*, 2021, 42(12): 122803.



于浩(2001-),男,山东省泰安人,凝聚态物理专业硕士研究生在读,主要从事胶体量子点发光和激光性能的研究。
E-mail: yuhao231@mails.ucas.ac.cn



郭晓阳(1982-),女,吉林长春人,博士,副研究员,博士生导师,2010年于中国科学院长春应用化学研究所获得博士学位,主要从事新型光电子材料与器件的研究。
Email: guoxy@ciomp.ac.cn



王垒(1989-),男,河南省南阳人,副教授,2019年于东北师范大学获材料物理与化学博士学位,主要从事量子点材料与发光器件方面研究。
Email: wanglei7869@henu.edu.cn