

文章编号: 1000-7032(2025)02-0195-08

基于频率-分辨干涉自相关区分 ZnO F-P 微腔的 二次谐波和多光子荧光

朱 海*, 董君行, 王润晨, 王立胜, 王竞卓, 张一帆

(中山大学 物理学院, 光电材料与技术国家重点实验室, 广东 广州 510275)

摘要: 利用微区频率-分辨干涉自相关技术研究了 ZnO 微米带以及 ZnO Fabry-Pérot 微腔(F-P 微腔)的非线性上转换光学性质。以化学气相沉积(Chemical vapor deposition, CVD)方法制备 ZnO 微米带,并通过干法转移置于一对分布式 Bragg 反射镜(Distributed Bragg reflector, DBR)之间构成二维强耦合 F-P 微腔,采用自搭建的微区光谱系统进行频率-分辨干涉和角分辨光谱测量。实验结果表明,以近红外超快激光泵浦 ZnO 样品,二次谐波(Second harmonic generation, SHG)和多光子吸收(Multi-photon absorption, MPA)上转换荧光信号将同时存在,并在频谱图上实现通过特性谱线区分 SHG 和 MPA 信号;在 ZnO 微腔中,SHG 和 MPA 信号还将占据不同的发射角度,讨论了微腔强耦合体系下 MPA 激子极化激元和二次谐波的竞争关系。该工作为通过高阶非线性上转换方法制备微腔激光器提供了参考。

关键词: 氧化锌; 频率-分辨干涉; 二次谐波; 多光子吸收; 强耦合微腔

中图分类号: O482.31 文献标识码: A

DOI: 10.37188/CJL.20240261 CSTR: 32170.14.CJL.20240261

Distinction Between Second Harmonic Generation and Multi-photon Luminescence in ZnO F-P Microcavity via Frequency-resolved Interferometric Autocorrelation

ZHU Hai*, DONG Junxing, WANG Runchen, WANG Lisheng,

WANG Jingzhuo, ZHANG Yifan

(State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, School of Physics,

Sun Yat-Sen University, Guangzhou 510275, China)

* Corresponding Author, E-mail: zhu hai5@mail.sysu.edu.cn

Abstract: The nonlinear up-conversion optical properties of ZnO micro-belt and ZnO Fabry-Pérot(F-P) micro-cavity were studied by using frequency-resolved interferometric autocorrelation. ZnO micro-belt were prepared by chemical vapor deposition(CVD) method and dry-transferred between a pair of distributed Bragg reflectors (DBR) to form a two-dimensional strongly coupled F-P microcavity. A home-built micro-spectroscopy system was used for interferometric autocorrelation and angle-resolved spectral measurements. The experimental results showed that when pumping ZnO samples with near-infrared ultrafast lasers, both second harmonic generation (SHG) and multi-photon absorption (MPA) upconversion fluorescence signals coexisted. The distinction between SHG and MPA signals could be achieved through different characteristic lines on the frequency spectra. In the case of ZnO F-P microcavity, SHG and MPA signals occupied different emission angles. The competitive relationship between MPA exciton-polaritons and SHG in the strong coupled microcavity system was discussed. Our results provided a reference for the study of microcavity lasers through higher-order nonlinear upconversion methods.

收稿日期: 2024-10-18; 修订日期: 2024-11-10

Key words: zinc oxide; frequency-resolved interference; second harmonic generation; multi-photon absorption; strong coupled microcavity

1 引 言

近几十年来,超快激光技术的发展使得在实验室中获得 GW/cm^2 以上量级的瞬时辐射功率密度成为可能,这大幅促进了光与物质之间强非线性相互作用的相关研究,诸如高次谐波产生、多光子吸收上转换等过程。 ZnO 作为宽禁带半导体的典型材料,具有 3.31 eV 的室温带隙宽度、高达 60 meV 的激子束缚能,以及较高的光学损伤阈值的特点,是研究非线性光学作用的理想材料^[1-2]。在以往的研究中, ZnO 晶体已被证实可由 2.4 μm 短波红外光源泵浦实现多达 7 光子吸收的上转换近带边辐射^[3]。在一些更进一步的工作中,通过微型光学谐振腔结构产生的增益作用,研究者在 ZnO 回音壁微腔和 F-P 微腔等结构中,实现了单模到多模的多光子上转换激光输出^[4-6]。

值得注意的是,在超快激光脉冲引起的光与物质非线性作用中,谐波和多光子吸收(MPA)上转换现象往往会同时发生,有时会导致混杂的信号。相关研究在金属纳米结构^[7-8]、 GaN ^[9]等材料中分别讨论了这些非线性行为的竞争关系。在 ZnO 材料体系中,有研究者在 ZnO 薄膜样品中通过频率-分辨干涉的方法实现了二次谐波(SHG)和 MPA 的区分,并重建了动力学模型^[10],在 ZnO 纳米棒样品中,通过 SHG 显微系统实现亚微米精度的时域和空域扫描^[11]。更近的研究实现了金属与 ZnO 复合结构中等离激元-激子耦合增强的和频生成效应^[12]。截至目前,SHG 和 MPA 竞争关系的研究集中于体材料和离散的纳米结构中,在半导体微腔结构中鲜有讨论,而这是低阈值上转换激光器实用化道路上可能遇到的实验影响因素。

在本工作中,我们以 ZnO 微米带以及 DBR 构成高质量的二维 F-P 微腔,研究了样品在以中心波长为 800 nm 的超快激光泵浦下产生的上转换光学过程。通过自搭建的微区频率-分辨干涉自相关和角分辨微区光谱系统,证实了 SHG、MPA 荧光信号的同时存在,观测到不同信号在角度分辨上的特征行为,讨论了强耦合体系下 MPA 激子极化激元和 SHG 的竞争关系。这些结果既是对物理原理的揭示,也为 MPA 微腔激光器的实用化带来了一定的帮助。

2 实 验

2.1 样品制备

实验中以化学气相沉积 CVD 方法生长 ZnO 微米带材料。在同一只试管中,将 Zn 粉置于底部,镀金石英衬底置于开口处,一同放入管式炉中加热。依据气-液-固生长原理^[13],在高温下, Zn 蒸汽会与 Ar/O_2 混合气体同时溶解在融化的 Au 液滴中。随后,由于液滴中 Zn 饱和与试管开口处温度降低, Zn 会在液滴表面析出并在高温下与 O_2 发生反应生成 ZnO 晶核。受生长速率以及晶面取向等因素的影响,通过 CVD 法生长的 ZnO 材料会呈现出线状、带状、柱状、梳状、针状等不同的形貌^[14]。将其中的 ZnO 微米带状结构通过干法转移到由电子束蒸镀制备的底部 DBR,在顶部覆盖以同样参数的 DBR 结构,DBR 的成分为 10 对 $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ 的 1/4 波长膜系。样品的器件结构和实验方法示意图如图 1(a)所示,近红外超快激光泵浦微腔内的 ZnO 微腔,出射的信号光在角度上可以分解为垂直于器件平面的 $k_\perp$ 方向和平行于器件平面的 $k_\parallel$ 方向。微腔内腔模光子与物质粒子在其寿命内发生多次循环时进入强耦合态,形成激子极化激元。在我们以往的工作中,已经讨论过 ZnO 二维 F-P 微腔激子极化激元的色散特征和非线性行为^[15-17]。此外, ZnO 微米线形成的回音壁微腔的激子极化激元现象近年来也受到研究者的持续关注^[18-20]。 ZnO 微米带的长度和宽度在几十到几百微米之间,厚度在百纳米量级。微米带样品的扫描电子显微镜(Scanning electron microscope, SEM)和原子力显微镜(Atomic force microscope, AFM)的表征图像如图 1(b)、(c)所示,样品具有清晰锐利的边缘以及光滑的表面,其表面粗糙度均方根为 1.2 nm。此外,通过台阶仪测量了微米带的轮廓,结果如图 1(d)所示,并采用矩形函数进行拟合,得到该样品的厚度为 630 nm,宽度为 40 μm 。为了使 ZnO 样品激发的光子能在微腔中反复振荡,设计的 DBR 结构反射率曲线如图 1(e)所示,DBR 的高反射率区间(360 ~ 450 nm)完整地覆盖了 ZnO 发光的信号范围,且对泵浦的近红外激光有高于 80% 的透过效率。

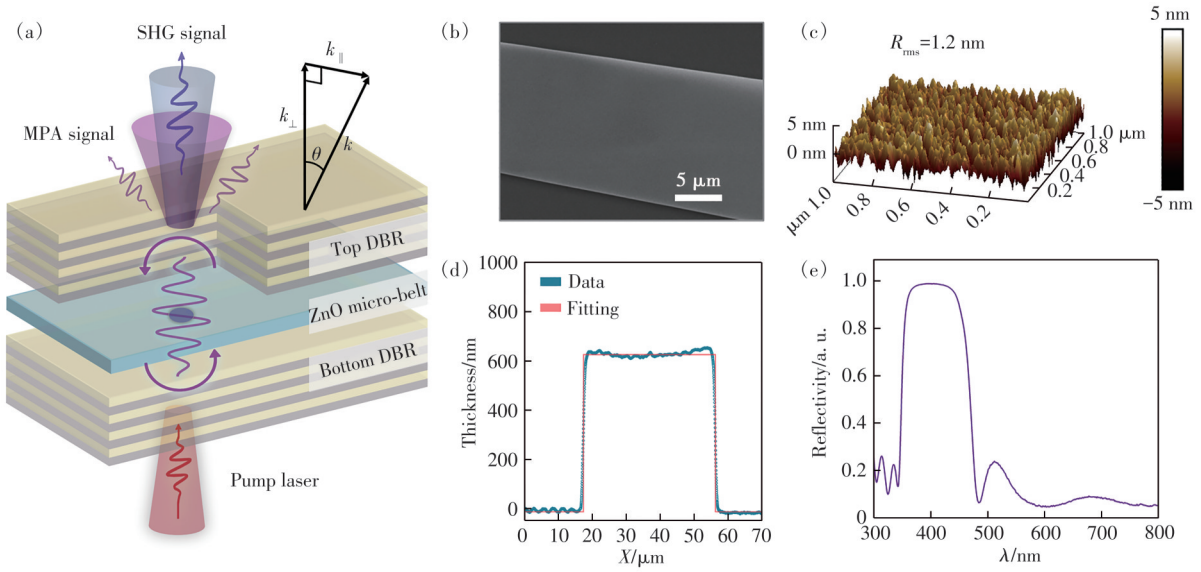


图1 结构示意图和样品表征。(a)ZnO F-P微腔的结构和光学泵浦方式;(b)ZnO微米带的SEM表征;(c)ZnO微米带的AFM表征;(d)ZnO微米带的厚度表征;(e)DBR结构反射率曲线

Fig. 1 Structure diagram and sample characteristics. (a) ZnO micro-belt with microcavity structure and optical pumping method. (b) SEM characterization of ZnO micro-belt. (c) AFM characterization of ZnO micro-belt surface. (d) Thickness characterization of ZnO micro-belt. (e) Reflectance curve of DBR

2.2 实验设置

自搭建的频率-分辨干涉自相关和角分辨微区光谱系统如图2所示。所有的实验测试在室温条件下进行。由Ti:Sapphire振荡器(Coherent As-trella)产生中心波长800 nm、脉宽100 fs、重频为1 kHz的宽带超快激光,经由分光晶体和反射镜M1、M2构成的Michelson干涉仪分为延时可控的前后脉冲。延时器由压电位移台控制,型号为

Physik Instrumente P-518,扫描步长设置为10 nm。以双物镜(O1, O2)共聚焦的方式对样品进行泵浦并收集发光信号,物镜O1前设置小孔S1以提高光束质量并限制泵浦的入射角度。收集物镜后方加入短通滤波片过滤泵浦光信号,采用透镜组L1、L2和小孔S2构成4f系统,在物镜L2后侧的Fourier面上设置可移动小孔S3,以使光谱仪(HORIBA MicroHR)可收集包含角度信息的光谱。

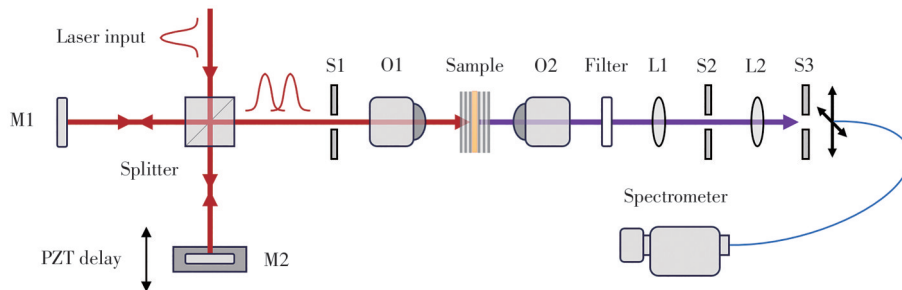


图2 光学测量系统示意图

Fig. 2 Schematic diagram of optical measurement system

定义 $E(t)$ 为单个人射激光脉冲的复电场,在 τ 的延时下,双脉冲信号在共线条件下的自相关(interferometric autocorrelation, IAC)电场为: $E(t)+E(t-\tau)$,由此产生的SHG信号光强满足^[21]:

$$I_{\text{SHG}}(\tau, \omega) \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} (E(t) + E(t - \tau))^2 e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (1)$$

MPA的荧光过程满足^[22-24]:

$$I_{\text{MPA}}(\tau, \omega) \propto I_0(\omega) \int_{-\infty}^{\infty} \left| (E(t) + E(t - \tau))^n \right|^2 dt, \quad (2)$$

其中, n 是非线性阶数,一般情况下对应于一次多光子吸收过程参与的光子数, $I_0(\omega)$ 为材料固有的光致发光谱。图3展示了SHG和三光子荧光信号(Triple-photon photoluminescence, TPPL)的时域和频域的数值模拟图像,其中频域信号是由时域信

号经过快速 Fourier 变换 (Fast Fourier transform, FFT) 得到。上述两个过程的主要区别在于, SHG 信号是相干发射过程, 发射的光信号与泵浦激光脉冲保持固定的相位关系, 与之类似的相干发射过程还有 Rayleigh 散射, 这意味着在时域和频域的 IAC 图谱中, 存在与频率相关的条纹, 表现为反曲状倾斜, 如图 3(a)、(b) 所示 (在实验中以光谱波长代替频率), 频域图中除基频

外共有两个高阶分量, 对应于 SHG 的二阶非线性响应; MPA 是非相干发射过程, 样品中重新发射的电场丧失了泵浦信号的相位关系, IAC 图谱的条纹仅来源于入射激光的强度自相关, 即在时域和频域的 IAC 图谱中, 所有频率存在等间距的条纹^[10], 如图 3(c)、(d) 所示, TPPL 过程的非线性阶数为 3, 对应频谱图中除基频外的 3 个高阶分量。

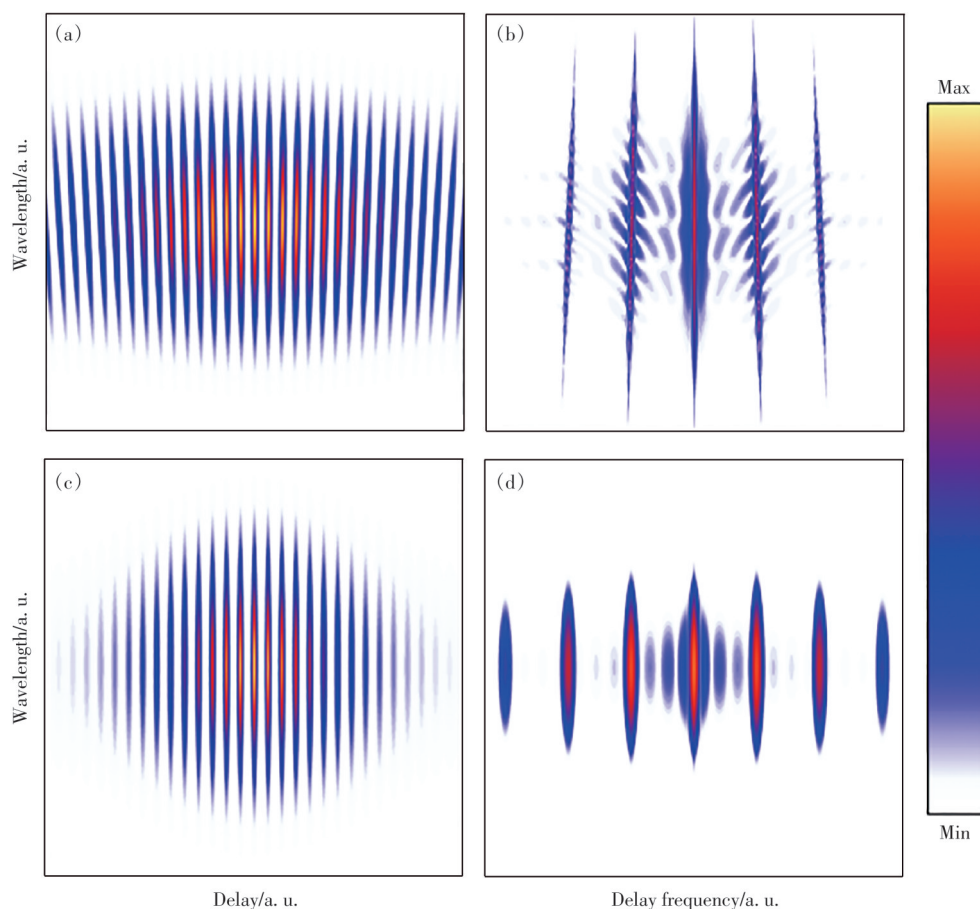


图 3 IAC 的模拟计算图像。(a) SHG 信号的时域 IAC 图像; (b) SHG 信号的频域 IAC 图像; (c) TPPL 信号的时域 IAC 图像; (d) TPPL 信号的频域 IAC 图像

Fig. 3 Simulation images of IAC. (a) Time-domain IAC images of SHG signals. (b) Frequency-domain IAC images of SHG signals. (c) Time-domain IAC images of TPPL signals. (d) Frequency-domain IAC image of TPPL signal

3 结果与讨论

3.1 ZnO 微米带

在研究多光子上转换过程中, 变功率激发光谱是常用的研究手段之一。ZnO 微米带的变功率发光光谱如图 4(a) 所示。随着功率的增加, 光谱展示了典型的非线性增长过程。对光谱信号积分得到功率依赖的双对数曲线如图 4(b) 所示, 图中辅助虚线标注了非线性系数为 $n = 2$ 以及 $n = 3$ 的拟合线, 而实验数据的非线性系数介于两者之间,

说明了 ZnO 微米带发光信号的复杂性, 变功率发光光谱无法直接判断信号的来源。

为了更好地分析光谱信号的来源, 我们采用上述的频率-分辨干涉测量方法得到 ZnO 微米带的 IAC 图像。得到的时域 IAC 测量图像如图 5(a) 左侧所示, 图中信号的峰值位于 385 nm 附近, 在这个波段处光谱表现为多光子吸收荧光行为, 存在与 y 轴平行条纹, 且在靠近零延迟的中央区域强度增加。在长波区域, 光谱表现为谐波信号行

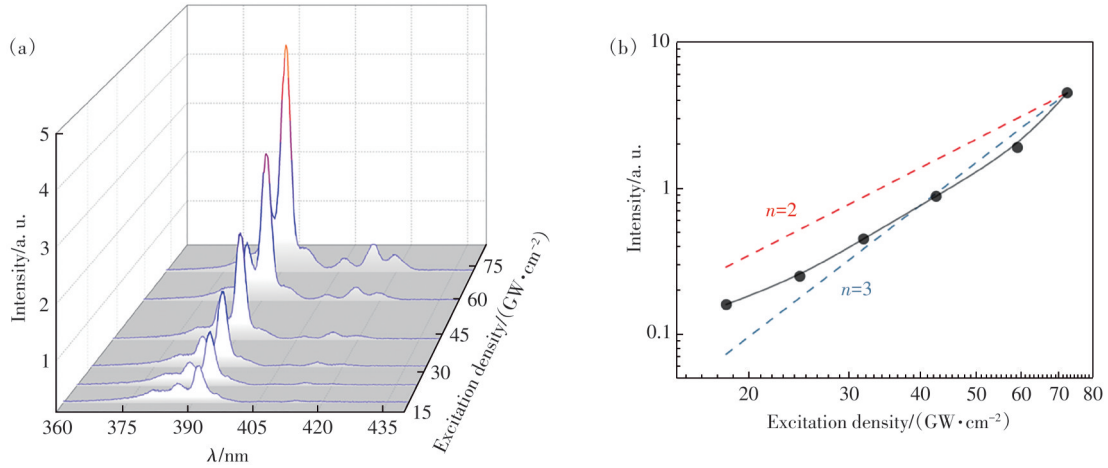


图4 ZnO微米带的变泵浦功率发光研究,信号包括在385 nm处近带边辐射的主峰、周围的荧光和谐波信号,以及能量更低处的缺陷发光。(a)样品的变功率密度发光光谱;(b)发光光谱信号强度的功率依赖曲线

Fig. 4 Variable pump power luminescence of ZnO micro-belt. The signal includes the peak of near-band emission at 385 nm, surrounding fluorescence and harmonic signals, and defect luminescence at lower energy. (a) Variable power density luminescence spectra. (b) Power-dependent curve of spectral intensity

为,条纹的周期与波长相关。图5(a)右侧图谱给出了IAC图像的数值模拟结果,条纹的行为特征与实验结果描述的现象相符。对时域IAC的数据作FFT处理,得到的频域IAC图像如图5(b)所示,同样左图为实验测量值,右图为数值模拟结果。

在多光子吸收荧光波段,可以观察到频谱图中存在等间距的三阶高频信号,这证实了实验过程中产生了TPPL的非线性过程。谐波的特征谱也在图中有所展示,长波区间存在两个高阶的倾斜条纹,这与前文理论计算的现象一致。

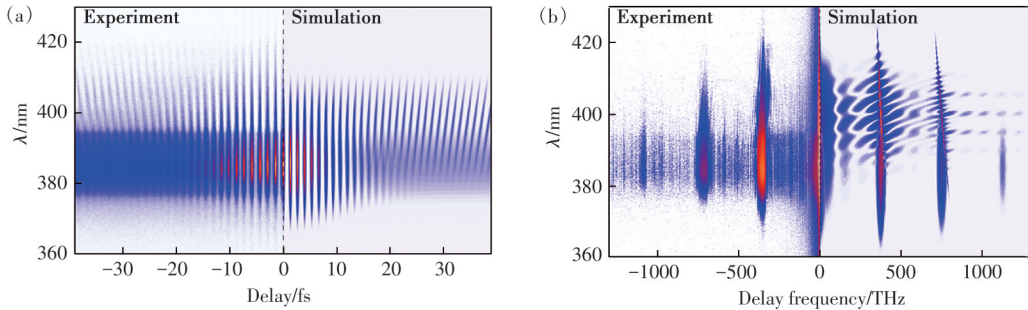


图5 ZnO微米带的IAC图像,各图中左侧为实验测量值,右侧为数值模拟结果。(a)样品的时域IAC图像;(b)样品的频域IAC图像

Fig. 5 IAC images of ZnO micro-belt, with experimental measurements on the left and numerical simulation results on the right. (a) Time-domain IAC images of the samples. (b) Frequency-domain IAC images of samples

3.2 ZnO F-P微腔

进一步地,我们在ZnO的F-P微腔中研究上转换发光信号的组成。当微腔中的样品处于激发态时,激子与腔模会通过交换光子发生振荡并产生强耦合态下的激子极化激元,产生能级劈裂。微腔腔模的能量色散曲线 E_c 由下式给出^[25]:

$$E_c = \frac{\hbar c}{n_c} k = \frac{\hbar c}{n_c} k_{\perp} \sqrt{1 + k_{\parallel}^2/k_{\perp}^2} \approx \frac{\hbar c}{n_c} k_{\perp} \left(1 + \frac{k_{\parallel}^2}{2k_{\perp}^2} \right), \quad (3)$$

其中, n_c 是微腔介质的折射率,式中的近似在小角

度条件下成立($k_{\parallel} \ll k_{\perp}$)。在角分辨光谱下,腔模 E_c 对于 $k_{\parallel}$ 表现出类抛物线的色散行为。当激子与腔模视为理想二体系统的条件下,能级劈裂产生的上能支 E_{up} 和下能支 E_{lp} 的色散曲线为^[26-27]:

$$E_{up} = \frac{1}{2} [E_c + E_x + \sqrt{(E_c - E_x)^2 + 4\hbar^2 \Omega^2}], \quad (4)$$

$$E_{lp} = \frac{1}{2} [E_c + E_x - \sqrt{(E_c - E_x)^2 + 4\hbar^2 \Omega^2}], \quad (5)$$

其中, E_x 为激子能级,在 k 空间中为常数。由于材料的自吸收效应以及室温下强烈的激子-声子相互作用,上能支寿命极短且难以探测^[15]。一般由

极化激元下能支辐射出更容易被记录的光谱信息。图 6(a)给出了由近红外飞秒激光泵浦的 ZnO 泵浦微腔的角分辨光谱,图中的辅助线标注了激子能量(橙色),以及 3 个不同模式下对应的腔模(白色)和下能支(红色)色散曲线。微腔中不同角度的发光行为存在较大差异,其中,信号的高强度区域位于较大角度($3 \mu\text{m}^{-1} < k_{\parallel} < 5 \mu\text{m}^{-1}$)的位置。这是源于在多光子上转换产生激子极化激元的过程中,声子散射通道存在瓶颈,仅有少数极化激元下能支的粒子能弛豫至基态,因而系统发射光子的位置存在于较高 $k_{\parallel}$ 值处;而低 $k_{\parallel}$ 值区间信号光较弱,同时微腔内的 ZnO 材料也会产生 SHG 信号,并通过微腔的腔模发射,而不参与强耦合过程,因而会保留入射激光的角度信息,在信

号光的角分辨光谱中占据低 $k_{\parallel}$ 值区间。

为了验证微腔光谱信号的组成,对 ZnO 微腔不同发射角度的信号作 IAC 测量。图 6(b)、(c)展示了频域 IAC 测量的结果,其中图 6(b)的图像采集于角分辨光谱中 $k_{\parallel} = 0$ 附近的区域,图谱展现了与波长相关的二阶高频条纹,符合 SHG 的信号特征,即说明了 SHG 信号保持小角度区域的发射;高 $k_{\parallel}$ 值的频域 IAC 结果如图 6(c)所示,此处的信号存在与波长平行的三阶高频条纹,来源于三光子吸收过程。图 6(d)展示了 ZnO 微腔中 MPA 和 SHG 竞争的色散物理图像,频谱 IAC 测量的结果与前文分析的结论相符,证实了 SHG 信号和三光子吸收的信号占据了不同的发射角度。

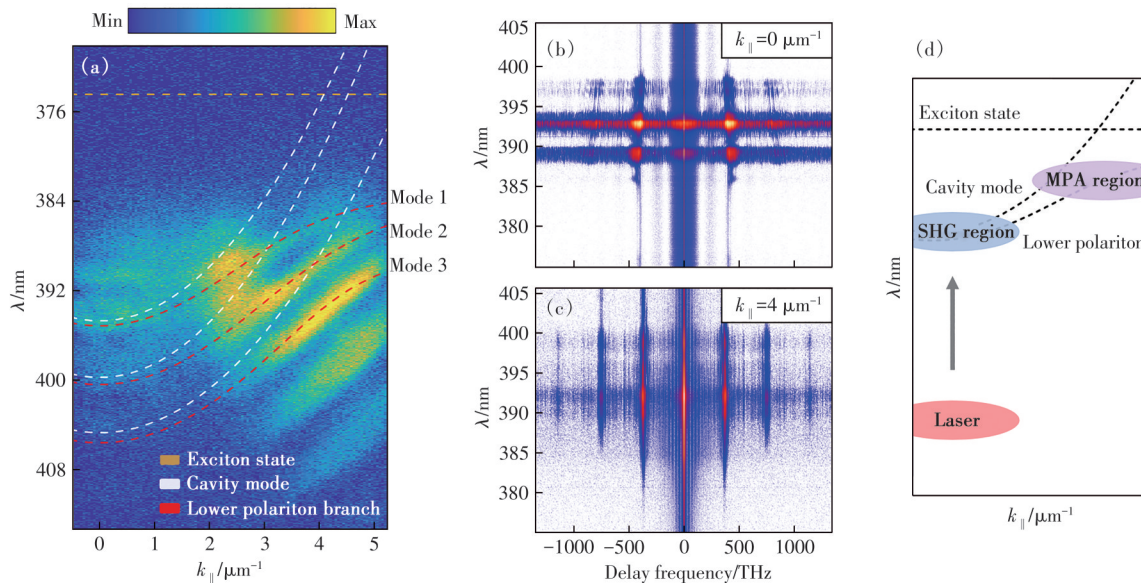


图 6 ZnO 微腔的角分辨光谱和 IAC 测量。(a)近红外激光泵浦的 ZnO 微腔色散图;(b) $k_{\parallel} = 0$ 附近信号的频域 IAC 图像;(c) $k_{\parallel} = 4 \mu\text{m}^{-1}$ 附近信号的频域 IAC 图像;(d)ZnO 微腔中 MPA 和 SHG 竞争的物理图像示意图

Fig. 6 Angular-resolved spectra and IAC measurements of ZnO microcavity. (a)Dispersion diagram of ZnO microcavity pumped by near-infrared ultrafast laser. Frequency-domain IAC images of signals near $k_{\parallel} = 0$ (b) and $k_{\parallel} = 4 \mu\text{m}^{-1}$ (c). (d)Schematic diagram of competition between MPA and SHG in ZnO microcavity

4 结 论

本文通过微区频率-分辨干涉自相关和角分辨光谱系统,证实了 ZnO 微米带在近红外飞秒激光泵浦过程中同时存在 SHG、TPPL 信号,观测到 ZnO 微腔中不同上转换信号在角分辨光谱上的特征行为,定性描述了强耦合体系下多光子吸收激子极化激元和二次谐波竞争的物理图像,实验结果和理论分析吻合良好。我

们的工作提供了一种区分不同的上转换过程的实验方法,这些结果将有助于理解半导体强耦合微腔的高阶非线性行为,有望为低阈值上转换激光器进一步的理论研究和实验工作带来启发。

本文专家审稿意见及作者回复内容的下载地址:
<http://cjllightpublishing.cn/thesisDetails#10.37188/CJL.20240261>

参 考 文 献:

- [1] ÖZGÜR Ü, ALIVOV Y I, LIU C, *et al.* A comprehensive review of ZnO materials and devices [J]. *J. Appl. Phys.*, 2005, 98(4): 041301.
- [2] DJURIŠIĆ A B, LEUNG Y H. Optical properties of ZnO nanostructures [J]. *Small*, 2006, 2(8-9): 944-961.
- [3] ZHU H, CHEN A Q, WU Y Y, *et al.* Seven-photon-excited upconversion lasing at room temperature [J]. *Adv. Opt. Mater.*, 2018, 6(16): 1800518.
- [4] TANG Z Y, ZHENG H Y, WANG Y Q, *et al.* Ultralow-threshold six-photon-excited upconversion lasing in a plasmonic microcavity [J]. *Nanoscale*, 2022, 14(20): 7589-7595.
- [5] HUANG Y, ZHU H, ZHENG H Y, *et al.* Five-photon absorption upconversion lasing from on-chip whispering gallery mode [J]. *Nanoscale*, 2020, 12(10): 6130-6136.
- [6] WANG R C, WANG Y Q, ZHENG H Y, *et al.* Ultra-low threshold single-mode upconversion lasing in a strong coupled microcavity *via* four-photon absorption [J]. *Adv. Opt. Mater.*, 2024, 12(4): 2301637.
- [7] BEVERSLUIS M R, BOUHELIER A, NOVOTNY L. Continuum generation from single gold nanostructures through near-field mediated intraband transitions [J]. *Phys. Rev. B*, 2003, 68(11): 115433.
- [8] SALOMON A, KOLLMANN H, MASCHECK M, *et al.* Space- and time-resolved second harmonic spectroscopy of coupled plasmonic nanocavities [J]. *Nanophotonics*, 2021, 10(14): 3635-3645.
- [9] COQUILLAT D, VECCHI G, COMASCHI C, *et al.* Enhanced second- and third-harmonic generation and induced photoluminescence in a two-dimensional GaN photonic crystal [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, 87(10): 101106.
- [10] SCHMIDT S, MASCHECK M, SILIES M, *et al.* Distinguishing between ultrafast optical harmonic generation and multiphoton-induced luminescence from ZnO thin films by frequency-resolved interferometric autocorrelation microscopy [J]. *Opt. Express*, 2010, 18(24): 25016-25028.
- [11] MASCHECK M, SCHMIDT S, SILIES M, *et al.* Observing the localization of light in space and time by ultrafast second-harmonic microscopy [J]. *Nat. Photon.*, 2012, 6(5): 293-298.
- [12] ZHONG J H, VOGELSANG J, YI J M, *et al.* Nonlinear plasmon-exciton coupling enhances sum-frequency generation from a hybrid metal/semiconductor nanostructure [J]. *Nat. Commun.*, 2020, 11(1): 1464.
- [13] MOHAMMAD S N. Analysis of the vapor-liquid-solid mechanism for nanowire growth and a model for this mechanism [J]. *Nano Lett.*, 2008, 8(5): 1532-1538.
- [14] CHANG P C, FAN Z Y, WANG D W, *et al.* ZnO nanowires synthesized by vapor trapping CVD method [J]. *Chem. Mater.*, 2004, 16(24): 5133-5137.
- [15] CHEN Z Y, ZHENG H Y, ZHU H, *et al.* Robust polariton bose-einstein condensation laser *via* a strong coupling microcavity [J]. *Laser Photonics Rev.*, 2020, 14(12): 2000273.
- [16] WANG Y Q, ZHENG H Y, TANG Z Y, *et al.* Spin-polarization-induced chiral polariton lasing at room temperature [J]. *ACS Photonics*, 2023, 10(6): 1936-1943.
- [17] WANG R C, WANG Y Q, DONG J X, *et al.* The intermode polariton parametric scattering laser in a strong coupled microcavity *via* two-photon absorption [J]. *Nano Lett.*, 2024, 24(29): 8988-8995.
- [18] TIAN C, CHEN L Q, ZHANG Y J, *et al.* Relaxation oscillations of an exciton-polariton condensate driven by parametric scattering [J]. *Nano Lett.*, 2022, 22(7): 3026-3032.
- [19] CHEN F, ZHOU H, LI H, *et al.* Femtosecond dynamics of a polariton bosonic cascade at room temperature [J]. *Nano Lett.*, 2022, 22(5): 2023-2029.
- [20] ZHU L Q, PAN Y C, CHEN L Q, *et al.* Rydberg state single-mode polariton lasing with ultralow threshold *via* symmetry engineering [J]. *Nano Lett.*, 2023, 23(17): 7797-7804.
- [21] AMAT-ROLDÁN I, CORMACK I G, LOZA-ALVAREZ P, *et al.* Ultrashort pulse characterisation with SHG collinear-FROG [J]. *Opt. Express*, 2004, 12(6): 1169-1178.
- [22] LI Y, YANG Y G, QIN C B, *et al.* Coherent interference fringes of two-photon photoluminescence in individual Au nanoparticles: the critical role of the intermediate state [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2021, 127(7): 073902.
- [23] HERGERT G, VOGELSANG J, SCHWARZ F, *et al.* Long-lived electron emission reveals localized plasmon modes in disordered nanosponge antennas [J]. *Light: Sci. Appl.*, 2017, 6(10): e17075.

- [24] GLISERIN A, CHEW S H, CHOI S, *et al.* Interferometric time- and energy-resolved photoemission electron microscopy for few-femtosecond nanoplasmonic dynamics [J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 2019, 90(9): 093904.
- [25] KESSLER E M, GROCHOL M, PIERMAROCCHI C. Light-mass Bragg cavity polaritons in planar quantum dot lattices [J]. *Phys. Rev. B*, 2008, 77(8): 085306.
- [26] 李峰, 熊启华. 微腔极化激元三十年: 历史、现状与展望 [J]. *物理*, 2022, 51(7): 445-453.
LI F, XIONG Q H. Thirty years of cavity polaritons: the past, present and future [J]. *Physics*, 2022, 51(7): 445-453.
(in Chinese)
- [27] DENG H, WEIHS G, SNOKE D, *et al.* Polariton lasing *vs.* photon lasing in a semiconductor microcavity [J]. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 2003, 100(26): 15318-15323.



朱海(1982-),男,江苏徐州人,博士,教授,博士生导师,2011年于中国科学院长春光学精密机械与物理研究所获得博士学位,主要从事宽禁带半导体光电材料与器件物理研究。

E-mail: zhuhai5@mail.sysu.edu.cn