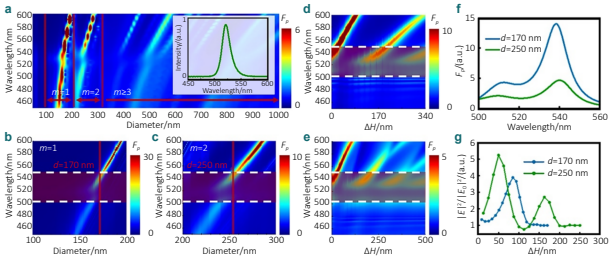
OEE | 光电工程 Opto-Electronic Engineering
微纳光子学：结构与器件专题
Article
2026 年 7 月, 第 53 卷, 第 7 期

单光子泵浦下基于光子晶体微腔的 $CsPbBr_3$ 量子点低阈值放大自发辐射



冯全红，李云霄，刘正豪，程　晨*

山东师范大学物理与光电学院，山东 济南 250300

摘要：全无机卤化物钙钛矿 $CsPbX_3$（X = Cl, Br, I）量子点（quantum dots, QDs）因其极高的荧光量子产率和带隙可调等特性，已成为新一代激光增益介质的研究焦点。然而，在全无机体系中实现超低阈值放大自发辐射（amplified spontaneous emission, ASE）仍是当前光电子器件走向实用化的核心挑战之一。本研究提出将 $CsPbBr_3$ QDs 与 SiO_2 基光子晶体（photonic crystals, PCs）集成的协同策略，构建 $CsPbBr_3$-QD-PCs 复合微腔结构，以显著提升光学增益。通过时域有限差分法（FDTD）仿真优化微腔设计，采用真空辅助自组装法制备复合薄膜，并系统表征了其结构、稳态光谱及超快动力学特性。结果表明，得益于 Purcell 效应为核心的微腔增强，$CsPbBr_3$-QD-PCs 的光致发光（photoluminescence, PL）强度增强至纯 QDs 薄膜的 3.8 倍，PL 寿命从 1.96 ns 缩短至 1.24 ns。在 400 nm 飞秒激光泵浦下，该复合体系实现了低至 8.7 μJ/cm²的 ASE 阈值；瞬态吸收光谱揭示微腔使光学增益寿命从 1924 ps 大幅缩短至 618 ps，显著加速了粒子数反转的建立。本研究阐明了光子晶体微腔增强钙钛矿光学增益的物理机制，为低功耗全无机受激发射器件提供了关键技术平台。

关键词：钙钛矿；光子晶体；量子点；放大自发辐射

The English title and abstract appear at the end of the paper.

DOI: 10.12086/oee.2026.260101 | CSTR: 32245.14.oee.2026.260101 | 中图分类号：O482 | 文献标识码：A

冯全红，李云霄，刘正豪，等. 单光子泵浦下基于光子晶体微腔的 $CsPbBr_3$ 量子点低阈值放大自发辐射 [J]. 光电工程，2026，**53**(7): 260101

Feng Q H, Li Y X, Liu Z H, et al. Low-threshold amplified spontaneous emission in $CsPbBr_3$ quantum dots via photonic crystal microcavities under single-photon pumping[J]. *Opto-Electron Eng*, 2026, **53**(7): 260101

1　引　言

全无机卤化物钙钛矿量子点，特别是 $CsPbX_3$ (X = Cl，Br，I)，因其极高的光致发光量子产率、带隙易于调控以及可低温合成等优异特性，在光电子学领域引起了广泛关注[1-5]，其卓越的发光性能和不断提升的热稳定性使其在高性能白光发光二极管等领域展现出巨大的应用潜力[6]，为了满足高性能器件对量子点高质量、规模化制备的需求，研究人员致力于开发和优化包括热注射法、配体辅助再沉淀法，以及超声化学辅助法等在内的多种低成本、高效率的量子点本征制备工艺[7]。在高性能激光器开发中，$CsPbX_3$ 作为增益介质展现出卓越的非线性光学潜力[8-11]。放大自发辐射是实现激光输出的先决条件，它为激光的产生提供了必要的光学放大过程[12-14]。

收稿日期：2026-04-28；修回日期：2026-07-13；录用日期：2026-07-14；网络出版日期：2026-07-25
基金项目：山东省自然科学基金资助项目山东省技术创新引导计划 (科技成果转移转化补助〈鲁渝科技协作〉)
*通信作者：程晨，drccheng@sdnu.edu.cn
版权所有©2026 中国科学院光电技术研究所

ASE 阈值直接反映了材料以最小能量输入实现并维持粒子数反转的能力，因此实现低阈值放大自发辐射 (amplified spontaneous emission, ASE) 对于开发实用型激光器至关重要[15]。为了突破增益介质固有自发辐射特性的限制，研究人员们致力于研究各类微纳尺度下的工程化光学微腔，如利用钙钛矿自然结晶形成的单晶纳米线 (法布里-珀罗腔)[16] 和纳米板 (回音壁模式腔)[17] 结构的固有光学限域效应，已成功实现激光输出。除了这些天然的几何结构外，研究人员还探索了回音壁微球腔[18]、垂直腔[19] 以及光子晶体[20] 等人工谐振腔，以进一步增强光与物质的相互作用。在诸多谐振腔结构中，光子晶体的独特优势在于能够通过高品质因子 (Q) 与小模式体积 (V_m) 调控 Purcell 效应，进而调节自发辐射速率，从而有效提高光学增益并实现低阈值 ASE 乃至激光输出。

尽管现有研究取得了一定进展，但在基于 $CsPbX_3$ 的系统中实现超低的 ASE 阈值仍然存在挑战。虽然 $MAPBX_3$ (有机-无机杂化钙钛矿) 光子晶体已经实现了单模激光[15,21] 和分布反馈激光[22]，但它们的环境不稳定性阻碍了实际应用。相比之下，全无机 $CsPbX_3$ 量子点展现出更为卓越的环境稳定性、热稳定性，以及优异的非线性光学特性，但将其与高分辨率微纳结构进行深度集成或大规模图案化组装的研究仍处于起步阶段[23]，如何兼顾器件集成度与材料本征稳定性是当前的核心挑战之一[24]。目前针对 $CsPbX_3$-PCs 的研究主要集中于单光子泵浦的 ASE[25]，而在揭示微腔设计、增益动力学与阈值降低之间的内在耦合机制方面，尚存在巨大的探索空间。

本文提出了一种将 $CsPbBr_3$ 量子点与 SiO_2 基光子晶体相结合的协同策略 ($CsPbBr_3$-QD-PCs)，在单光子泵浦下实现了超低的 ASE 阈值。基于时域有限差分模拟的仿真结果，我们精确设计了具有优化的 Purcell 因子 (F_p > 2.5) 和强电场限域效应的光子晶体微腔。通过真空辅助自组装技术，利用直径 253 nm 的 SiO_2 微球的真空辅助自组装技术成功制备了 $CsPbBr_3$-QD-PCs，结果表明，该复合体系 PL 强度增强至原始量子点的 3.8 倍，且荧光寿命较原始量子点有所缩短 (从 1.96 ns 降至 1.24 ns)。TA 光谱进一步证实，该结构加速了光学增益的过程 (增益寿命从 1924 ps 缩短至 618 ps)，从而极大地促进了受激辐射粒子数反转的建立。据此，本文方法成功实现了单光子泵浦下低至 8.7 μJ/cm^2 的 ASE 阈值，在开发实用化、低阈值钙钛矿激光器领域取得了重要进展。

2 仿真模拟

$CsPbBr_3$-QD-PCs 的结构优化采用了时域有限差分法，该计算方法因其能精确解析电磁场分布而被广泛应用于光子器件设计。首先在仿真软件中进行物理建模：将密堆积的 SiO_2 微球 (折射率 n = 1.46) 紧密放置在石英基底 (折射率 n = 1.54) 上，并用 $CsPbBr_3$-QDs (折射率 n = 2.3~2.5) 包覆 SiO_2 微球。光子晶体微腔的谐振波长 λ_c 由布拉格衍射决定，修正后的布拉格衍射方程式 (1) 所示[24]。衍射波长取决于晶格常数 a、介质填充率 f、介质折射率 n、入射光角 θ 和衍射级 m。

$$m\lambda_c = 2a\sqrt{(f_1 n_1 + (1-f_1)n_2)^2 - \sin^2\theta}\,. \tag{1}$$

式 (1) 表明可以通过改变 a 和 f_1 来调控 λ_c，使光谱对准 $CsPbBr_3$-QDs 的荧光波段 (λ= 500~550 nm)[26-27]。材料在腔内的自发辐射速率 $\Gamma(\lambda)$、Purcell 因子 (F_p) 分别由式 (2)、(3) 给出，其中 $\Gamma_0(\lambda)$ 为材料在没有腔结构时的自发辐射速率，$L(\lambda) = 1/\left(1+4Q^2(\lambda/\lambda_c - 1)^2\right)$ 是 PCs 微腔的洛伦兹谱，$\psi = E\mu/|E_{max}||\mu|$ 表示偶极辐射 μ 和腔内电场 E 对自发辐射率的影响因素，F_{leak} 是 PCs 微腔的辐射泄漏损耗[26]。如式 (2) 所示，具有高 F_p 的 PCs 微腔能够显著提升自发辐射速率。自发辐射速率的提升有利于提高材料的光学增益，降低 ASE 阈值，进而促进激光的产生[28-31]。

$$\Gamma(\lambda) = \Gamma_0(\lambda)[F_p L(\lambda)|\psi|^2] + F_{leak}\,, \tag{2}$$

$$F_p = (3\lambda_c^3 Q)/(4\pi^2 n^3 V_m)\,. \tag{3}$$

利用 FDTD 对 $CsPbBr_3$-QD-PCs 薄膜的 Purcell 因子进行仿真，仿真结果如图 1 所示。图 1(a) 展示了当 ΔH = 0 (ΔH 表示 $CsPbBr_3$-QDs 薄膜高出 SiO_2 微球上表面的厚度) 时，在扫描步长为 5 nm 的设置下，F_p 随 SiO_2 微球直径 (d) 和衍射级数 (m) 的变化情况。在图 1 中可以观察到 F_p 的三个关键特征： 1) 如图 1(a) 的插图所示，$CsPbBr_3$-QDs 的荧光发射波段衍射级次 m = 1 和 m = 2 时观察均能观察到较高的 F_p 值； 2) 对于固定的 m，随着 d 的增大，F_p 峰发生红移。这是由于 a 和 f 的比例发生变化导致了光子晶体微腔谐振波长的红移 (如式 (1) 所示)； 3) F_p 的最大值随 m 的增加呈现近周期性分布，该分布受与微球直径 d 相关的 a 及 f 的共同调制。尽管增加 ΔH 会对 F_p 的峰值引入微小扰动，但 SiO_2 微球的直径仍是影响 F_p 的主要因素。

图 1(b) 和 1(c) 分别给出了 m = 1 和 m = 2 时，扫描步

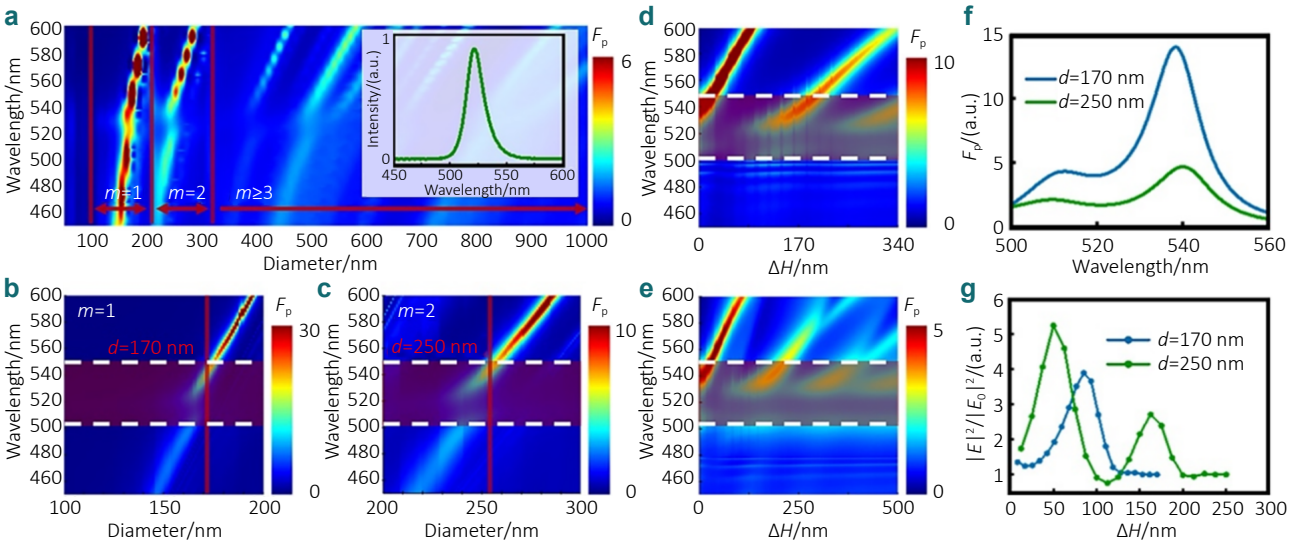


图 1 $CsPbBr_3$-QD-PCs 的 FDTD 模拟结果。(a) 直径 d = 50~1000 nm 范围内的 F_p 分布，扫描步长为 5 nm，插图为 $CsPbBr_3$-QDs 的光致发光强度；(b) d = 100~200 nm 及 (c) d = 200~300 nm 范围内的 F_p 分布，扫描步长为 1 nm；(d) d = 170 nm 与 (e) d = 250 nm 时 F_p 随不同厚度增量 ΔH 的变化；(f) d = 170 nm 与 d = 250 nm 时的 F_p 对比；(g) d = 170 nm 与 d = 250 nm 时不同 ΔH 下的电场强度分布

Fig. 1 FDTD simulation results of $CsPbBr_3$-QD-PCs. (a) F_p at d = 50-1000 nm with sweep step 5 nm, inset shows PL intensity of $CsPbBr_3$-QDs; (b) F_p at d = 100-200 nm and (c) d = 200-300 nm with sweep step 1 nm; (d) F_p at d = 170 nm and (e) d = 250 nm with different ΔH; (f) F_p at d = 170 nm and d = 250 nm; (g) Electric field intensity at d = 170 nm and d = 250 nm with different ΔH

长为 1 nm 的精细 F_p 光谱。通过精细扫描结果可以明显看出，当 d = 170 nm 和 d = 250 nm 时，$CsPbBr_3$-QD-PCs 在量子点发射波段内表现出较高的 F_p，且其 F_p 峰值在 λ= 540 nm 附近 (图 1(f))。其中，d = 250 nm 的 $CsPbBr_3$-QD-PCs 表现出更优异的鲁棒性，能够在更宽的厚度变化范围内将 Purcell 因子维持在 $F_p > 2.5$ (见图 1(d) 与 1(e))。当 d = 170 nm 时，随着 ΔH 的增加，Purcell 因子峰值呈现周期性分布。在 $CsPbBr_3$-QDs 的荧光波段内，存在特定的 ΔH 范围对应高 Purcell 因子，ΔH 可调范围约为 200 nm。当 d = 250 nm 时，随着 ΔH 的增加，Purcell 因子峰值同样呈现周期性分布。值得注意的是，具有高 Purcell 因子的 ΔH 可调范围约为 300 nm，远大于 d = 170 nm 时的可调范围。因此 d = 250 nm 的钙钛矿光子晶体在更宽广的薄膜可调范围表现出了高 Purcell 因子，这可以作为选择该结构的原因之一。电场强度分布图 (图 1(g)) 表明，这种对厚度变化的稳健性归因于其更强的电场局域效应。

3 实　验

本研究采用配体辅助再沉淀法 (ligand-assisted reprecipitation, LARP) 在室温大气环境下合成全无机 $CsPbBr_3$ 量子点。将适量溴化铯 (CsBr，西安浴光日能科技有限公司，规格：99.999%)、溴化铅 ($PbBr_2$，西安浴光日能科技有限公司，规格：99.999%) 以及油酸 (oleic acid, OA，西格玛奥德里奇贸易有限公司，规格：99.9%) 与油胺 (oleylamine, OAm，韶远科技，规格：95.6%) 配体溶解于 N,N-二甲基甲酰胺 (DMF，毕得医药，规格：97%) 和二甲基亚砜 (DMSO，西格玛奥德里奇贸易有限公司，规格：99.9%) 的混合溶剂中，剧烈搅拌至完全溶解，得到前驱体溶液。随后，将前驱体迅速注入剧烈搅拌的无水甲苯中，溶液瞬间转为黄绿色，表明量子点快速成核生长。为去除大尺寸杂质、未反应的前驱体盐及高沸点溶剂，对粗溶液进行双步离心纯化：先经低速离心弃去大颗粒沉淀，保留上清液；随后在上清液中加入适量乙酸乙酯作为反溶剂，静置后高速离心以洗脱残留的 DMF/DMSO 和过剩配体。最终收集高纯度 $CsPbBr_3$ 量子点沉淀，并重新分散于无水甲苯中备用[32]。

如图 2 所示，本研究采用真空辅助自组装法制备了 $CsPbBr_3$-QD-PCs 样品。首先，采用十二烷基硫酸钠 (sodium dodecyl sulfate, SDS) 辅助提升法制备了紧密堆

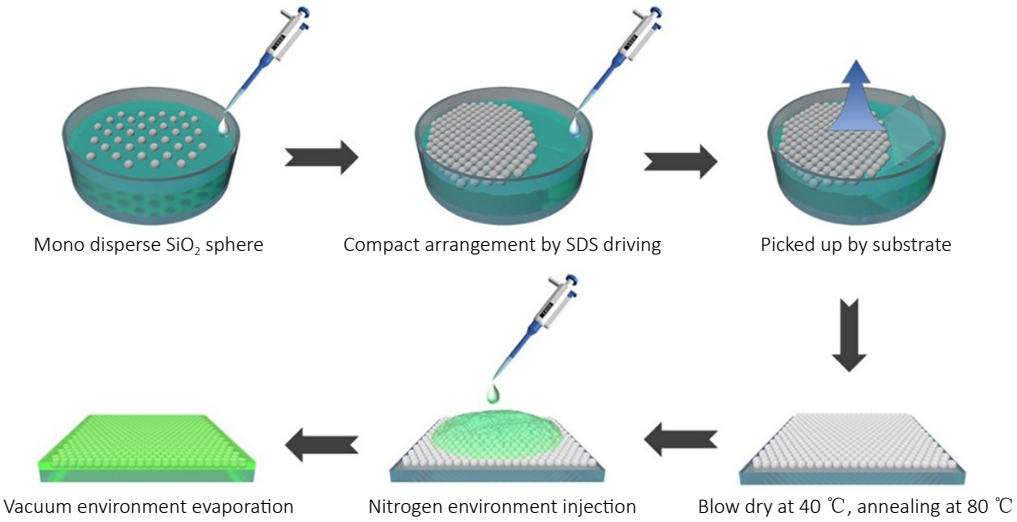


图 2 $CsPbBr_3$-QD-PC 的制备步骤

Fig. 2 Procedure for preparing $CsPbBr_3$-QD-PCs

积的光子晶体模板，形成周期性的六方紧密堆积结构。随后，在低真空度 (0.3~0.6 Pa) 条件下，将 $CsPbBr_3$ 量子点溶液逐渐滴加到 PCs 表面，以确保溶液的均匀渗透并形成高质量的薄膜。作为对比，另一组实验中，直接将量子点溶液滴涂在清洗后的石英衬底上，并进行相同的低压处理，制备了一层致密的 $CsPbBr_3$-QDs 薄膜。随后，采用 X 射线衍射 (X-ray diffraction, XRD) 和扫描电子显微镜 (scanning electron microscope, SEM) 对 $CsPbBr_3$-QD-PCs 的结构性质进行了表征。

图 3(a) 显示了 PCs 和 $CsPbBr_3$-QD-PCs 的 XRD 图谱。$CsPbBr_3$-QD-PCs 薄膜中的主要衍射峰分别对应于 $CsPbBr_3$ 正交相的 (100)、(110)、(200) 和 (210) 晶面，表明 $CsPbBr_3$-QDs 在 PCs 上具有较高的结晶质量，SEM 成像进一步验证了 PCs 和 $CsPbBr_3$-QD-PCs 的结构完整性。图 3(b) 显示了 SiO_2 微球的周期性六方紧密堆积结构，而图 3(c) 显示了 $CsPbBr_3$-QDs 已均匀覆盖在 PCs 表面。横截面 SEM 图像 (图 3(d)) 显示，量子点形成了厚度为 $D_1 \approx 436$ nm 的连续层，完全包裹了直径 $D_2 \approx 253$ nm 的 SiO_2 微球 (如白圈所示)。如图 3(e) 和 3(g) 所示，上述连续层与 SiO_2 微球的厚度偏差 ($\Delta H \approx 183$ nm) 与 FDTD 优化参数一致，从而确保了系统具备高的 F_p 和强电场局域效应。

图 3(e) 展示了 $CsPbBr_3$-QD-PCs 和 $CsPbBr_3$-QDs 薄膜的吸收光谱。由于 SiO_2 基 PCs 占据了 $CsPbBr_3$-QDs 薄膜的部分体积，$CsPbBr_3$-QD-PCs 的吸收强度明显低于 $CsPbBr_3$-QDs。尽管吸收减弱理论上会导致发射减弱，但在相同的 400 nm 飞秒激光激发条件下，$CsPbBr_3$-QD-PCs 的发光强度仍是 $CsPbBr_3$-QDs 薄膜的 3.8 倍 (图 3(f))，且 $CsPbBr_3$-QD-PCs 的 PL 发射峰表现出 15 nm 的红移。随后，测量了时间分辨光致发光 (time-resolved photoluminescence, TRPL) 寿命。如图 3(g) 所示，$CsPbBr_3$-QDs 的 PL 寿命为 1.96 ns，而 $CsPbBr_3$-QD-PCs 的 PL 寿命缩短至 1.24 ns。PL 寿命的缩短直观反映了微腔对自发辐射速率的提升，这是导致 PL 增强的重要因素[33-36]。同时如图 1(f) 所示，$CsPbBr_3$-QD-PCs 在其荧光光谱的高波段范围内 (530~550 nm) 具有较高的 F_p，并在 540 nm 处达到峰值。这一高 F_p 不仅为自发辐射速率的提升提供了理论支持 (如式 (2) 所示)，也解释了实验中观测到的 PL 峰红移现象。

为研究 PCs 结构对 ASE 性能的影响，记录了在 400 nm 的飞秒激光泵浦下 $CsPbBr_3$-QD-PCs 和 $CsPbBr_3$-QDs 的光致发光光谱。泵浦光源为钛宝石飞秒激光放大器 (spectra-physics solstice ace) 经 BBO 倍频模块产生的 400 nm 脉冲，脉宽约 35 fs，重复频率 1 kHz。图 4(a) 展示了在单光子飞秒泵浦下 $CsPbBr_3$-QD-PCs 的发射光谱随泵浦密度的演变。可以清晰地看到，随着泵浦强度的增加，在 540 nm 处出现了一个极窄的发射峰，且其峰值强度随泵浦通量的增加呈非线性迅速放大，这是 ASE 的一个典型特征。图 4(b) 进一步量化了这一特性：当泵浦密度达到 8.7 μJ/cm^2 时，输出强度曲线的斜率发生了明显的转折 (即阈值行为)，同时半高全宽 (full width at half maximum, FWHM) 迅速收窄至约为 6.7 nm。相比之

下，如图 4(c) 所示，$CsPbBr_3$-QDs 薄膜在相同泵浦条件下并未出现 ASE 现象。这表明 $CsPbBr_3$-QD-PCs 薄膜的 ASE 的实现高度依赖于光子晶体结构的作用，其核心驱动力源于 Purcell 效应驱动[28-29]。F_p在 ASE 的中心波长处达到峰值 (如图 1(f) 所示) 这一事实，进一步印证了上述物理机制。

为了深入探究 PCs 结构对 $CsPbBr_3$-QDs 光学增益动力学的影响，我们在 400 nm 泵浦下获得了 $CsPbBr_3$-QD-PCs 和 $CsPbBr_3$-QDs 的瞬态吸收光谱。图 5(a) 和图 5(b) 分别展示了 $CsPbBr_3$-QD-PCs 和 $CsPbBr_3$-QDs 的二维伪彩色瞬态吸收 (transient absorption，TA) 光谱，图 5(c) 和图 5(d) 则分别提取了在 0.2 ~7000 ps 的不同延迟时间

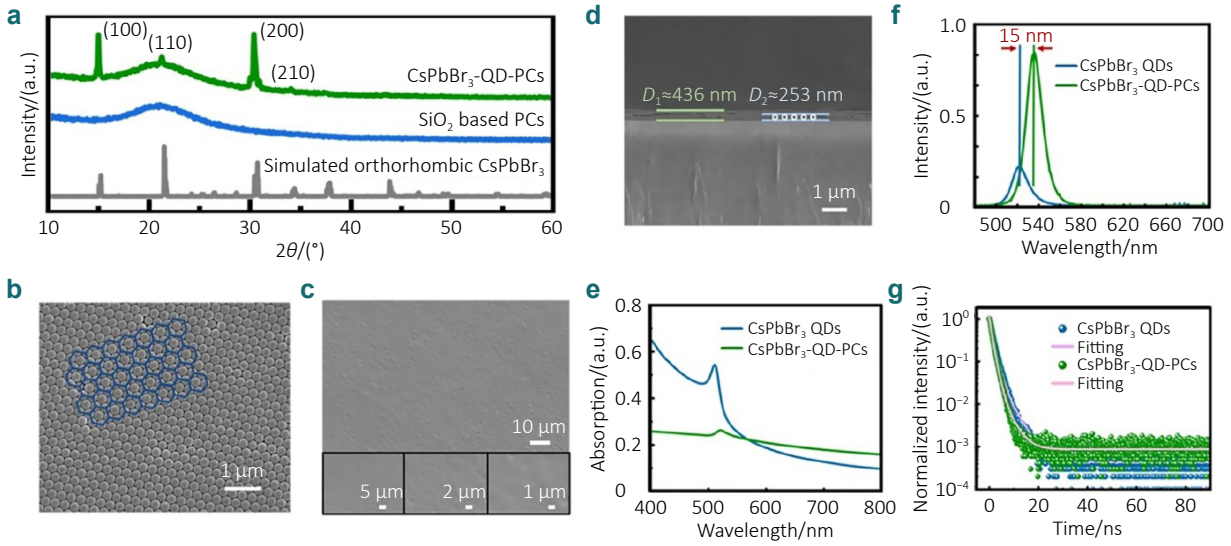


图 3 $CsPbBr_3$-QD-PCs 复合薄膜的结构与光学性质表征。(a) PCs 和 $CsPbBr_3$-QD-PCs 的 XRD 图谱；(b) PCs 的 SEM 图像，比例尺：1 μm；(c) $CsPbBr_3$-QD-PCs 薄膜的 SEM 图像，比例尺依次为：10 μm、5 μm、2 μm 及 1 μm；(d) $CsPbBr_3$-QD-PCs 薄膜截面的 SEM 图像，比例尺：1 μm；(e) $CsPbBr_3$-QD-PCs 与 $CsPbBr_3$-QDs 的吸收光谱；(f) $CsPbBr_3$-QD-PCs 与 $CsPbBr_3$-QDs 的 PL 强度，图中绿色与蓝色直线表示 PL 峰的最大峰值位置；(g) $CsPbBr_3$-QD-PCs 与 $CsPbBr_3$-QDs 的 TRPL 光谱图像

Fig. 3 Structural and Optical Characterizations of the CsPbBr*3*-QD-PCs Composite Films. (a) XRD patterns of PCs and $CsPbBr_3$-QD-PCs films; (b) SEM images of PCs with scale bar: 1 μm; (c) $CsPbBr_3$-QD-PCs films with scale bar: 10 μm, 5 μm, 2 μm, and 1 μm; (d) The cross section of the $CsPbBr_3$-QD-PCs films with scale bar: 1 μm; (e) The absorption spectra of $CsPbBr_3$-QD-PCs and $CsPbBr_3$-QDs; (f) The PL intensity of $CsPbBr_3$-QD-PCs and $CsPbBr_3$-QDs, the green and blue straight lines in the indicate the position of the maximum peak of PL; (g) TRPL spectral images of $CsPbBr_3$-QD-PCs and $CsPbBr_3$-QDs

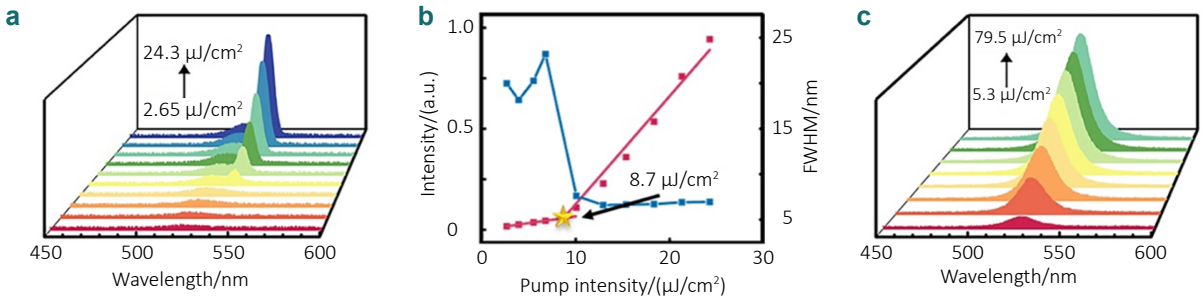


图 4 单光子泵浦下 $CsPbBr_3$-QD-PCs 与 $CsPbBr_3$-QDs 薄膜的 ASE 特性比较。(a) $CsPbBr_3$-QD-PCs 在单光子飞秒激光泵浦下的泵浦功率密度依赖 PL 光谱；(b) $CsPbBr_3$-QD-PCs 的输出强度 (红色) 与半高全宽 (蓝色) 在单光子飞秒激光泵浦下随泵浦功率密度的变化关系；(c) $CsPbBr_3$-QDs 在单光子飞秒激光泵浦下的泵浦功率密度依赖 PL 光谱

Fig. 4 ASE Properties of $CsPbBr_3$-QD-PCs and $CsPbBr_3$-QDs Films under Single-Photon Pumping. (a) Pump density-dependent PL spectra of $CsPbBr_3$-QD-PCs under single-photon femtosecond laser pumping respectively; (b) The output intensity (red) and FWHM (blue) of $CsPbBr_3$-QD-PCs as a function of pump density under single-photon femtosecond laser pumping respectively; (c) Pump density-dependent PL spectra of $CsPbBr_3$-QDs under single-photon femtosecond laser pumping respectively

范围内的 TA 信号。通过对比分析发现，两者具有四个共同的光谱特征： 1) 在 470~500 nm 范围内有光诱导激发态吸收； 2) 在 500~530 nm 范围内存在明显的基态漂白信号； 3) 在 530~550 nm 范围内，初始阶段观察到瞬态光吸收信号； 4) 随着延迟时间的增加，该光吸收信号迅速反转为受激辐射信号。然而，PCs 微腔的引入也导致了两者的 TA 光谱呈现显著差异：首先，可以清楚地观察到基态漂白信号中心波长发生了偏移 (图 5(c) 和图 5(d))，这与 PCs 结构引起的 $CsPbBr_3$-QD-PCs 的稳态 PL 峰的红移 (图 3(f)) 是一致的。至此，$CsPbBr_3$-QD-PCs 的 PL 红移可归因于以下机制的协同作用：1) Purcell 因子的光谱选择性增强是主导因素——本 PC 结构的 F_p 在 $\lambda \approx 540$ nm 处达到峰值且在 530~550 nm 波段维持较高水平，这导致 QD 发射波段内长波长侧的自发辐射速率被选择性增强，从而在表观上拉动 PL 峰位向长波方向移动；2) PC 结构改变了 QD 周围的局部介电环境 (有效折射率增大)，介电屏蔽的变化可引起激子结合能的微小改变，导致带边跃迁能量红移，这与 TA 光谱中观测到的基态漂白峰中心波长偏移一致；3) $CsPbBr_3$-QD-PCs 的光散射增强使得 PL 光子在逃逸表面前经历更多的重吸收——短波长光子因吸收截面较大而被优先消耗，也会使表观 PL 峰位红移。综合而言，Purcell 增强的光谱选择性是最主要的物理机制，介电环境变化和重吸收效应为辅助贡献。

瞬态动力学曲线进一步揭示了两者在激发态弛豫过程中的差异。如图 5(e) 所示，$CsPbBr_3$-QD-PCs 的基态漂白信号建立时间约为 960 ps，显著快于 $CsPbBr_3$-QDs 的 1501 ps (如图 5(f))。这种加速的基态漂白动力学过程表明，$CsPbBr_3$-QD-PCs 中载流子的辐射复合速率得到了提升，使得载流子能够从高能态更快速地弛豫至能带边缘，这一物理过程极为有利于 ASE 的产生[13]。图 5(g) 和图 5(h) 分别展示了两者在 ASE 波长 (约 540 nm) 处的 TA 动力学衰减曲线。纯 $CsPbBr_3$-QDs 的光学增益寿命为 1924 ps，而在引入 PCs 结构后，$CsPbBr_3$-QD-PCs 的增益寿命大幅缩短至 618 ps。需特别指出，此处的光学增益寿命 (由 TA 动力学在高激发密度下测量) 与前述 TRPL 寿命 (在低激发密度下测量) 是两种不同物理过程的度量，二者的差异具有明确的物理含义。PL 寿命 (1.24~1.96 ns) 反映的是低激发密度下 (远低于 ASE 阈值) 的自发辐射衰减过程，其特征时间为自发辐射寿命 τ_r；光学增益寿命 (618~1924 ps) 反映的是高激发密度下 (>ASE 阈值、存在粒子数反转) 受激辐射与自发辐射共同作用的衰减过程。增益寿命远短于 PL 寿命是受激辐射通道打开的直接标志——ASE 建立后腔内光子密度急剧增大，

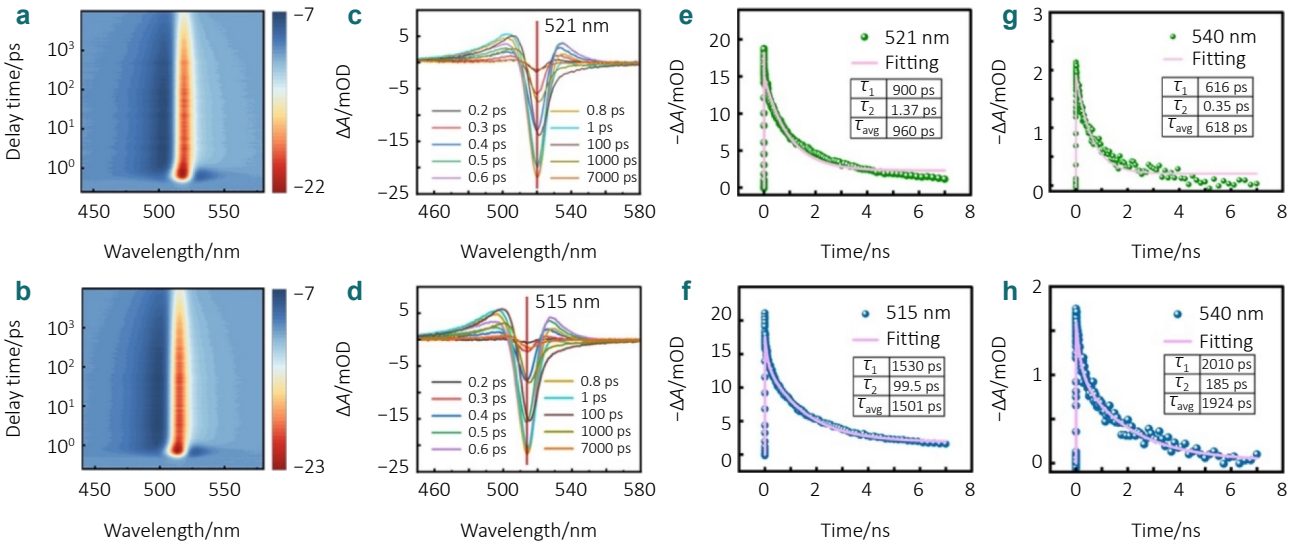


图 5 $CsPbBr_3$-QD-PCs 与 $CsPbBr_3$-QDs 在 400 nm 飞秒激光泵浦下的 TA 结果。(a) $CsPbBr_3$-QD-PCs 和 (b) $CsPbBr_3$-QDs 的伪彩色图；(c) $CsPbBr_3$-QD-PCs 与 (d) $CsPbBr_3$-QDs 在不同时间延迟下的 TA 光谱；(e) CsPbBr3-QD-PCs 与 (f) $CsPbBr_3$-QDs 在 GSB 峰处的 TA 动力学研究；(g) $CsPbBr_3$-QD-PCs 与 (h) $CsPbBr_3$-QDs 在 ASE 波长处的 TA 动力学研究

Fig. 5 TA results of $CsPbBr_3$-QD-PCs and $CsPbBr_3$-QDs under 400nm femtosecond laser excitation. Pseudo-color display of (a) $CsPbBr_3$-QD-PCs and (b) $CsPbBr_3$-QDs; (c) $CsPbBr_3$-QD-PCs and (d) $CsPbBr_3$-QDs show TA spectra at different time delays; TA dynamics study at GSB peak of (e) $CsPbBr_3$-QD-PCs and (f) $CsPbBr_3$-QDs; TA dynamics study at ASE wavelength of (g) $CsPbBr_3$-QD-PCs and (h) $CsPbBr_3$-QDs

受激辐射速率与光子密度成正比，远大于自发辐射速率，因此总衰减大幅加速。值得关注的是，纯 $CsPbBr_3$-QDs 薄膜的增益寿命 (1924 ps) 与其 PL 寿命 (1.96 ns) 接近，表明在无 PC 反馈的条件下受激辐射通道低效，增益衰减以自发辐射为主导，这与图 4(c) 中纯 QD 薄膜未出现 ASE 的实验事实自洽。相反，$CsPbBr_3$-QD-PCs 中增益寿命从 1924 ps 大幅缩短至 618 ps (约 3.1 倍加速)，说明 PC 结构通过 Purcell 增强与 Bragg 反馈成功激活了高效的受激辐射通道，使激发态能以受激辐射的方式被迅速消耗[18,25]。这一更为迅捷的增益建立与衰减过程表明，$CsPbBr_3$-QD-PCs 中，激子通过辐射复合释放能量的速率成功竞争过了陷阱态捕获、声子散射和俄歇复合等非辐射复合通道[21,35]。这证明了 $CsPbBr_3$-QD-PCs 能够更迅速地实现并消耗激发态粒子数反转，快速建立起稳定的增益状态，从而实现对产生 ASE 至关重要的高效光放大过程。

为了客观评估本研究 $CsPbBr_3$-QD-PCs 的 ASE 性能水平，将本文实验结果与近年来报道的 $CsPbBr_3$ 基增益介质的 ASE 阈值进行了系统对比。结果表明，本研究实现的 8.7 μJ/cm^2 阈值在溶液法 $CsPbBr_3$ 量子点体系中处于领先水平。例如，热蒸发法制备的 $CsPbBr_3$ 薄膜 ASE 阈值约为 35 μJ/cm^2 [36]，溶液旋涂法制备的 $CsPbBr_3$ 薄膜阈值通常在 26~100 μJ/cm^2 范围内[37]，而嵌入玻璃基质中的 $CsPbBr_3$ 纳米晶阈值约为 54.5 μJ/cm^2 [38]。本研究采用的光子晶体微腔策略展现出独特的物理优势：Purcell 效应在增强自发辐射速率的同时，还加速了光学增益的建立过程 (如瞬态吸收光谱所证实)。

4 结　论

本研究中通过将 $CsPbBr_3$ 量子点与光子晶体微腔结构相集成，成功实现了超低阈值的放大自发辐射。利用时域有限差分法进行仿真与结构优化，设计并制备了具有高 Purcell 因子和强电场限域效应的 $CsPbBr_3$-QD-PCs 复合体系。基于自组装光子晶体模板，采用真空辅助组装工艺确保了量子点在微腔间隙中的均匀渗透与高质量成膜。实验表征结果表明，得益于微腔增强效应，$CsPbBr_3$-QD-PCs 的 PL 寿命从 1.96 ns 显著缩短至 1.24 ns，PL 发光强度提升至纯量子点薄膜的 3.8 倍。瞬态吸收动力学分析揭示，PCs 微腔使光学增益寿命从 1924 ps 大幅缩短至 618 ps，极大地加速了激发态粒子数反转的建立过程。凭借以上性能优势，该体系在单光子泵浦条件下，实现了低至 8.7 μJ/cm^2 的 ASE 阈值。本研究不仅深入剖析了光子晶体微腔增强钙钛矿材料光学增益的内在物理机制，也为开发新一代低功耗、高性能的全无机钙钛矿激光器件提供了重要的理论依据与技术支撑。

作者贡献

冯全红：论文撰写、数据收集；李云霄：模拟仿真、实验指导；刘正豪：数据收集；程晨：论文指导选题、论文撰写与审核。

利益冲突

所有作者声明无利益冲突

参考文献

1. Zhao X S, Dong J, Wu D F, et al. Effect of steric hindrance of butylammonium iodide as interface modification materials on the performance of perovskite solar cells[J]. *Solar RRL*, 2022, **6** (7): 2200078.
2. Goldreich A, Prilusky J, Prasad N, et al. Highly stable $CsPbBr_3$@MoS_2 nanostructures: synthesis and optoelectronic properties toward implementation into solar cells[J]. *Small*, 2024, **20** (45): 2404727.
3. Cao Y Q, Guan Q S, Hu R J, et al. Nonradiative energy transfer enables a $h\nu < E_g$ response of perovskite quantum dots in Si-based inorganic–organic hybrid solar cells[J]. *J Phys Chem Lett*, 2024, **15** (31): 7870−7877.
4. Bapathi K S R, Abdelbar M F, Jevasuwan W, et al. Enhancing silicon photodetector performance through spectral downshifting using core-shell CdZnS/ZnS and perovskite $CsPbBr_3$ quantum dots[J]. *Nano Energy*, 2024, **128**: 109832.
5. Wang S, Yang S H, Xu Z L, et al. A high-performance photodetector based on a ZnO/$CsPbBr_3$ quantum-dot-level-contact hybrid sandwich structure[J]. *J Mater Chem C*, 2025, **13** (2): 902−909.
6. He J H. High-performance warm white LED based on thermally stable all inorganic perovskite quantum dots[J]. *Opto-Electron Adv*, 2023, **6** (3): 230022.
7. Zhang T W, Hu K, Li G B, et al. Research progress in the quantum dots of nonmetals and their compounds prepared by ultrasonic method[J]. *Opto-Electron Eng*, 2024, **51** (4): 230319.
张泰玮, 胡坤, 李国彬, 等. 超声法制备非金属及其化合物量子点研究进展[J]. 光电工程, 2024, **51** (4): 230319.
8. Yuan S, Dai L J, Sun Y Q, et al. Efficient blue electroluminescence from reduced-dimensional perovskites[J]. *Nat Photonics*, 2024, **18** (5): 425−431.
9. Gao Z J, Shao X W, Huang Z J, et al. Short-chain ligand achieves ultra-stable $CsPbX_3$ perovskite quantum dots for white light-emitting diodes[J]. *Appl Phys Lett*, 2024, **124** (4): 041106.
10. Li X W, Ma W, Liang D H, et al. High-performance $CsPbBr_3$@Cs_4PbBr_6/SiO_2 nanocrystals via double coating layers for white light emission and visible light communication[J]. *eScience*, 2022, **2** (6): 646−654.
11. Kim J, Roh J, Park M, et al. Recent advances and challenges of colloidal quantum dot light-emitting diodes for display applications[J]. *Adv Mater*, 2024, **36** (20): 2212220.
12. Wang Z J, Yang J, Li M H, et al. Low threshold and ultrastability of one-step air-processed all-inorganic $CsPbX_3$ thin films toward full-color visible amplified spontaneous emission[J]. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2022, **14** (23): 26904−26912.
13. Tian J Y, Tan Q Y, Wang Y T, et al. Perovskite quantum dot one-

dimensional topological laser[J]. *Nat Commun*, 2023, **14** (1): 1433.
14. Barfüßer A, Feldmann J, Akkerman Q A. Biexcitonic optical gain in $CsPbBr_3$ quantum dots[J]. *ACS Photonics*, 2024, **11** (12): 5350−5357.
15. Pourdavoud N, Wang S, Mayer A, et al. Photonic nanostructures patterned by thermal nanoimprint directly into organo-metal halide perovskites[J]. *Adv Mater*, 2017, **29** (12): 1605003.
16. Zhu H M, Fu Y P, Meng F, et al. Lead halide perovskite nanowire lasers with low lasing thresholds and high quality factors[J]. *Nat Mater*, 2015, **14** (6): 636−642.
17. Zhang Q, Ha S T, Liu X F, et al. Room-temperature near-infrared high-Q perovskite whispering-gallery planar nanolasers[J]. *Nano Lett*, 2014, **14** (10): 5995−6001.
18. Sutherland B R, Hoogland S, Adachi M M, et al. Conformal organohalide perovskites enable lasing on spherical resonators[J]. *ACS Nano*, 2014, **8** (10): 10947−10952.
19. Huang S H, Shen Z X, Liao Y, et al. Water-resistant subwavelength perovskite lasing from transparent silica-based nanocavity[J]. *Adv Mater*, 2023, **35** (52): 2306102.
20. Hou S Y, Xie A Z, Xie Z W, et al. Concurrent inhibition and redistribution of spontaneous emission from all inorganic perovskite photonic crystals[J]. *ACS Photonics*, 2019, **6** (6): 1331−1337.
21. Chen S T, Roh K, Lee J, et al. A photonic crystal laser from solution based organo-lead iodide perovskite thin films[J]. *ACS Nano*, 2016, **10** (4): 3959−3967.
22. Mikosch A, Ciftci S, Tainter G, et al. Laser emission from self-assembled colloidal crystals of conjugated polymer particles in a metal-halide perovskite matrix[J]. *Chem Mater*, 2019, **31** (7): 2590−2596.
23. Yan Z J, Liu Z, Yang X, et al. Perovskite quantum dot color conversion Micro-LEDs: progress in stability and patterning[J]. *Opto-Electron Eng*, 2024, **51** (7): 240088.
严梓峻, 刘众, 杨晓, 等. 钙钛矿量子点色转换 Micro-LEDs: 稳定性与图案化研究进展[J]. 光电工程, 2024, **51** (7): 240088.
24. Cheng C, Kou H L. Nanocrystal and quasi-2D perovskites as optical gain media: from ASE to laser[J]. *X-Disciplinarity*, 2025: 1-12.
25. Schroden R C, Al-Daous M, Blanford C F, et al. Optical properties of inverse opal photonic crystals[J]. *Chem Mater*, 2002, **14** (8): 3305−3315.
26. Sauvan C, Hugonin J P, Maksymov I S, et al. Theory of the spontaneous optical emission of nanosize photonic and Plasmon resonators[J]. *Phys Rev Lett*, 2013, **110** (23): 237401.
27. Gan X T, Gao Y D, Mak K F, et al. Controlling the spontaneous emission rate of monolayer MoS_2 in a photonic crystal nanocavity[J]. *Appl Phys Lett*, 2013, **103** (18): 181119.
28. Vyshnevyy A A. Gain-dependent Purcell enhancement, breakdown of Einstein's relations, and superradiance in nanolasers[J]. *Phys Rev B*, 2022, **105** (8): 085116.
29. Ren J J, Franke S, VanDrunen B, et al. Classical Purcell factors and spontaneous emission decay rates in a linear gain medium[J]. *Phys Rev A*, 2024, **109** (1): 013513.
30. Akahane Y, Asano T, Song B S, et al. High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal[J]. *Nature*, 2003, **425** (6961): 944−947.
31. Englund D, Altug H, Vučković J. Low-threshold surface-passivated photonic crystal nanocavity laser[J]. *Appl Phys Lett*, 2007, **91** (7): 071124.
32. Li X M, Wu Y, Zhang S L, et al. $CsPbX_3$ quantum dots for lighting and displays: room-temperature synthesis, photoluminescence superiorities, underlying origins and white light-emitting diodes[J]. *Adv Funct Mater*, 2016, **26** (15): 2435−2445.
33. Gan X T, Mak K F, Gao Y D, et al. Strong enhancement of light–matter interaction in graphene coupled to a photonic crystal nanocavity[J]. *Nano Lett*, 2012, **12** (11): 5626−5631.
34. Li D Y, Zhou D L, Xu W, et al. Plasmonic photonic crystals induced two-order fluorescence enhancement of blue perovskite nanocrystals and its application for high-performance flexible ultraviolet photodetectors[J]. *Adv Funct Mater*, 2018, **28** (41): 1804429.
35. Liang Y, Shang Q Y, Wei Q, et al. Lasing from mechanically exfoliated 2D homologous Ruddlesden–Popper perovskite engineered by inorganic layer thickness[J]. *Adv Mater*, 2019, **31** (39): 1903030.
36. Kominko Y, Sabisch S, Kanak A, et al. Stable, room-temperature, low-threshold amplified spontaneous emission from thermally evaporated cesium lead halide perovskites[J]. *ACS Nano*, 2025, **19** (32): 29216−29227.
37. De Giorgi M L, Perulli A, Yantara N, et al. Amplified spontaneous emission properties of solution processed $CsPbBr_3$ perovskite thin films[J]. *J Phys Chem C*, 2017, **121** (27): 14772−14778.
38. Zhang R D, Zhou Z H, Li X Y, et al. Low-threshold and ultrastable amplified spontaneous emission from $CsPbBr_3$@glass via glass network modulation[J]. *ACS Nano*, 2025, **19** (14): 14318−14329.

作者简介



冯全红 (2001-)，女，硕士研究生。研究聚焦钙钛矿微纳光子器件和钙钛矿发光机制机理。

E-mail：2024317064@stu.sdnu.edu.cn



【通信作者】程晨 (1989-)，男，博士，副教授，研究方向包括超快激光与物质相互作用、集成光子器件等。在*IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*、*ACS Photonics* 和 *Appl. Phys. Lett.*等同行评审期刊上发表论文 50 余篇。此外，主持了由国家自然科学基金、国家重点研发计划以及山东省自然科学基金资助的多项科研项目。

E-mail：drccheng@sdnu.edu.cn

Low-threshold amplified spontaneous emission in $CsPbBr_3$ quantum dots via photonic crystal microcavities under single-photon pumping

Feng Quanhong, Li Yunxiao, Liu Zhenghao, Cheng Chen*

School of Physics and Optoelectronics, Shandong Normal University, Jinan, Shandong 250300, China

Abstract

Objective All-inorganic $CsPbX_3$ quantum dots (QDs) are promising gain media for next-generation lasers due to their excellent optoelectronic properties and superior stability. However, achieving ultralow-threshold amplified spontaneous emission (ASE) remains a challenge. While hybrid perovskites integrated with photonic crystals (PCs) suffer from environmental instability, the integration of stable $CsPbX_3$ QDs with PC microcavities is still in its infancy. Here, we engineer a PC microcavity that synergistically couples with $CsPbBr_3$ QDs to enhance the spontaneous emission rate via the Purcell effect, thereby dramatically reducing the ASE threshold under single-photon pumping and elucidating the underlying gain dynamics.

Methods A strategy that integrates $CsPbBr_3$ QDs with SiO_2-based PCs to construct a composite microcavity ($CsPbBr_3$-QD-PCs) was proposed. The PC microcavity was first optimized using the finite-difference time-domain (FDTD) method. The physical model consisted of close-packed SiO_2 microspheres (refractive index n=1.46) on a quartz substrate (n=1.54), coated with $CsPbBr_3$ QDs (n=2.3–2.5). The resonance wavelength was governed by a modified Bragg diffraction equation, and the Purcell factor F_p was computed to quantify spontaneous emission enhancement. The simulation parameter space included SiO_2 microsphere diameters d=50–1000 nm, diffraction orders m=1 and 2, and QD overlayer thickness increments ΔH. Experimentally, $CsPbBr_3$ QDs were synthesized via the ligand-assisted reprecipitation (LARP) method at room temperature, using CsBr and $PbBr_2$ as precursors with oleic acid and oleylamine as ligands dissolved in DMF/DMSO, followed by a two-step centrifugation purification. The PC template was fabricated via an SDS-assisted lifting method using SiO_2 microspheres of approximately 253 nm diameter, forming a hexagonal close-packed periodic structure. $CsPbBr_3$ QD solution was infiltrated into the PC template under low vacuum (0.3–0.6 Pa). A dense $CsPbBr_3$ QD film on quartz served as the control. Characterizations included XRD, SEM, steady-state absorption and PL spectroscopy, time-resolved photoluminescence (TRPL), and femtosecond transient absorption (TA) spectroscopy. The pump source was a Ti:sapphire femtosecond laser amplifier (Spectra-Physics Solstice Ace) frequency-doubled via a BBO crystal to produce 400 nm pulses (~35 fs, 1 kHz).

Results and Discussions FDTD simulations revealed three key features of F_p within the $CsPbBr_3$ QD emission window (λ=500–550 nm): 1) high F_p at diffraction orders m=1 and m=2; 2) the F_p peak red-shifts with increasing SiO_2 diameter d owing to variations in the lattice constant and filling fraction; 3) the maximum F_p exhibits a near-periodic distribution with m. Fine spectral scans identified d=170 nm (m=1) and d=250 nm (m=2) as optimal diameters, both with F_p peaking near 540 nm. The d=250 nm design was selected for its superior robustness: the ΔH tolerance range maintaining $F_p > 2.5$ was approximately 300 nm, substantially broader than the ~200 nm range for d=170 nm, attributable to stronger electric field localization.

XRD confirmed the orthorhombic phase of $CsPbBr_3$ QDs. SEM revealed the periodic hexagonal close-packed structure and uniform QD coverage, with a continuous QD layer (D_1≈436 nm) fully encapsulating the SiO_2 microspheres (D_2≈253 nm), yielding ΔH≈183 nm consistent with FDTD optimization. Despite lower absorption due to the SiO_2 volume, the PL intensity of $CsPbBr_3$-QD-PCs was enhanced 3.8-fold compared with bare QD films, accompanied by a PL redshift of approximately 15 nm. This redshift is primarily attributed to the spectrally selective Purcell enhancement (F_p peaking at λ≈540 nm), with additional contributions from the modified local dielectric environment and enhanced reabsorption of shorter-wavelength photons. TRPL measurements showed that the PL lifetime was shortened from 1.96 ns (bare QDs) to 1.24 ns (QD-PCs), directly evidencing the Purcell-enhanced spontaneous emission rate.

Under 400 nm femtosecond laser pumping, $CsPbBr_3$-QD-PCs exhibited clear ASE: a narrow emission peak emerged at ~540 nm with superlinear intensity growth. The ASE threshold was determined to be 8.7 μJ/cm^2, with the FWHM narrowing to approximately 6.7 nm. Bare $CsPbBr_3$ QD films showed no ASE under identical conditions, confirming the essential role of the PC microcavity.

Foundation item: Shandong Province Scientific and Technological Achievement Transfer and Transformation Subsidy (Shandong-Chongqing Science and Technology Cooperation) Project

*Correspondence: Cheng C, E-mail: drccheng@sdnu.edu.cn

TA spectroscopy further elucidated the gain dynamics. Both samples shared four spectral features: excited-state absorption (470–500 nm), ground-state bleaching (GSB, 500–530 nm), transient photoinduced absorption (530–550 nm), and its subsequent inversion into stimulated emission. The PC microcavity shifted the GSB center wavelength consistently with the PL redshift and accelerated the GSB rise time from 1501 ps to 960 ps, indicating Purcell-enhanced carrier relaxation to the band edge. Critically, the optical gain lifetime at ~540 nm was drastically shortened from 1924 ps (bare QDs) to 618 ps (QD-PCs), a ~3.1-fold acceleration. This demonstrates that the PC structure activates a highly efficient stimulated emission channel, enabling the excited state to be rapidly depleted via stimulated emission and outcompeting nonradiative recombination. A systematic comparison with reported $CsPbBr_3$-based gain media—including thermally evaporated films (~35 μJ/cm^2), spin-coated films (26–100 μJ/cm^2), and glass-embedded nanocrystals (~54.5 μJ/cm^2)—confirms the competitiveness of the 8.7 μJ/cm^2 threshold achieved here. The solution-based self-assembly approach offers the advantage of large-area, low-cost fabrication without complex lithography.

Conclusions In summary, we have demonstrated ultralow-threshold ASE by integrating $CsPbBr_3$ QDs with a PC microcavity. FDTD optimization yielded a $CsPbBr_3$-QD-PCs composite with $F_p > 2.5$ and strong electric field confinement, fabricated via vacuum-assisted self-assembly. The PC microcavity enhanced the PL intensity 3.8-fold, shortened the PL lifetime from 1.96 ns to 1.24 ns, and accelerated the optical gain lifetime from 1924 ps to 618 ps, enabling an ASE threshold of 8.7 μJ/cm^2 under single-photon pumping. This work elucidates the Purcell effect-driven mechanism by which PC microcavities enhance perovskite optical gain, and provides a platform for developing low-power, high-performance all-inorganic perovskite laser devices.

Keywords: perovskite; photonic crystals; quantum dots; amplified spontaneous emission

Feng Q H, Li Y X, Liu Z H, et al. Low-threshold amplified spontaneous emission in $CsPbBr_3$ quantum dots via photonic crystal microcavities under single-photon pumping[J]. *Opto-Electron Eng*, 2026, **53**(7): 260101; DOI: 10.12086/oee.2026.260101

Opto-Electronic Journals Group
www.oejournal.org

扫描二维码，获取 PDF 全文