

金纳米颗粒调控量子点激子自发辐射速率*

李元和¹⁾²⁾ 卓志瑶¹⁾²⁾ 王健¹⁾²⁾ 黄君辉¹⁾²⁾ 李叔伦¹⁾²⁾ 倪海桥¹⁾²⁾ 牛智

川¹⁾²⁾ 窦秀明^{1)2)†} 孙宝权^{1)2)†}

1) (中国科学院半导体研究所, 超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

2) (中国科学院大学, 材料科学与光电技术学院, 北京 100049)

摘要

将 InAs/GaAs 量子点样品薄膜置于覆盖有直径为 50 nm 的金 (Au) 纳米颗粒的硅衬底上, 可以调控量子点激子的自发辐射速率. 实验发现, 当量子点浸润层距离 Au 纳米颗粒表面 15-35 nm 时, 激子自发辐射速率受到抑制, 且距离为 19 nm 时抑制作用最大, 导致量子点激子的自发辐射速率减小到没有 Au 纳米颗粒时自发辐射速率的 $\sim 10^{-3}$. 基于经典的偶极辐射模型模拟计算的激子自发辐射速率与实验结果一致.

关键词: 量子点, 自发辐射速率, 金属纳米颗粒, 长寿命激子

PACS: 78.67.Hc, 73.20.Mf, 61.46.-w, 78.47.-p

* 国家自然科学基金(批准号: 61827823, 11974342)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: xmdou@semi.ac.cn; bqsun@semi.ac.cn

1 引言

半导体量子点 (QD) 由于结构上存在三维限制和类原子特性, 因而具有一系列独特的性质, 如量子点可作为理想的固态单光子源, 单光子源在量子密钥等量子信息方面有着重要的应用^[1, 2]. 相关地, 如何调控单量子态的光学跃迁一直是该领域的重要研究方向. 基于 Fermi 黄金定律, 量子点激子的自发辐射速率正比于激子所处位置的电磁场的态密度^[3, 4]. 由 Purcell 理论知^[5], 改变激子所在位置的电磁场局域态密度 (LDOS), 可以改变量子点中激子的自发辐射速率, 进而可以调控半导体量子点自发辐射. LDOS 的改变可以基于激子的辐射场与散射场之间的相互干涉^[3, 6]. 如置于平面镜附近的偶极子辐射, 其自发辐射速率会

随着偶极子的取向和偶极子到平面镜的距离而改变。如果平面镜的反射场与偶极子辐射场相位相同，偶极子位置的 LDOS 将会增加，导致偶极子自发辐射速率增强。若反射场与偶极子辐射场的相位相反，则偶极子的自发辐射受到抑制。这类实验首先于 1960 年由 Drexhage 等人报道^[3, 7]，最近在二维半导体材料中也有类似的发现^[8, 9]。除了平面反射镜外，实验和理论工作显示，通过在发光偶极子附近放置金属腔可以调控偶极子自发辐射^[4, 10-15]，而其中球形的金属纳米颗粒可以产生局域电场的增强效应^[14, 16-18]，也受到了广泛的关注。不过，这些研究主要集中在如何利用金属局域场来提高量子点激子的发光效率^[19, 20]，而对于抑制激子自发辐射的研究较少^[21, 22]。抑制激子的自发辐射，即制备长寿命的激子态恰是激子的玻色-爱因斯坦凝聚研究中的必要条件^[23, 24]。本文在实验上使用金（Au）纳米颗粒抑制 InAs/GaAs 量子点浸润层（WL）激子的自发辐射速率，从而导致长寿命的浸润层激子被量子点俘获，在量子点中观察到长寿命激子的延迟发光现象。

在本文中，我们首先从偶极子辐射的经典模型出发，将 Au 纳米颗粒看作在量子点浸润层激子辐射场作用下极化产生的电偶极子，计算了 Au 纳米颗粒偶极辐射场对量子点浸润层激子偶极辐射的影响，得到了量子点浸润层激子的自发辐射速率公式。实验上将量子点薄膜样品放置在覆盖有 Au 纳米颗粒膜的硅片上，测量量子点样品的荧光（PL）和时间分辨（TRPL）光谱，得到在 Au 纳米颗粒作用下，量子点激子自发辐射速率随 GaAs 间隔层厚度的变化。我们发现偶极子辐射的经典模型可以很好地解释实验结果。

2 理论

量子点激子复合速率可以写成^[25]

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = 1 + \frac{6\pi\epsilon_0\epsilon_s}{d_0^2} \text{Im} \frac{\mathbf{d}_0 \mathbf{E}^{(R)}(\mathbf{r}')}{k^3} \quad (1)$$

这里 γ 和 γ_0 分别表示有和没有 Au 纳米颗粒时的量子点薄膜样品激子的自发辐射速率； \mathbf{d}_0 是激子偶极矩， $\mathbf{E}^{(R)}(\mathbf{r}')$ 表示 Au 纳米颗粒在激子位置处的散射电场， \mathbf{r}' 表示激子在空间中的位置， k 是激子在 GaAs 介质中发光的波数， ε_s 表示激子所处介质的介电常数。在本实验中介质为 GaAs， $\varepsilon_s = 13.4$ 。从方程

(1) 知，计算激子的辐射速率主要需要金属颗粒的散射电场。一般情况下，金属颗粒的散射电场需要求解麦克斯韦方程组得到。而对于本文讨论的实验条件，金属纳米颗粒的半径 (25 nm) 和激子距离纳米颗粒表面的距离 (~几十 nm) 均远小于激子的荧光波长，因此我们可以忽略电场的推迟效应，将金属纳米颗粒视作在激子辐射场下极化的偶极子，且等效偶极子位于金属球球心，由此再求金属纳米颗粒偶极子在激子处的散射电场 $\mathbf{E}^{(R)}(\mathbf{r}')$ 。由方程 (1) 计算激子辐射速率的变化。

已知激子（电偶极子）的辐射场可以写成^[26]

$$\mathbf{E}_0 = \frac{k^3}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_s} \mathbf{d}_0 \left(\frac{1}{kr} + \frac{i}{(kr)^2} - \frac{1}{(kr)^3} \right) e^{ikr} \quad (2)$$

在激子辐射场的影响下，金属纳米颗粒将被极化，其中极化率和准静态极化率写成^[17]

$$\alpha(\omega) = \frac{\alpha_0(\omega)}{1 - \frac{ik^3\alpha_0(\omega)}{6\pi}}, \quad \alpha_0(\omega) = 4\pi R^3 \frac{\varepsilon_m - \varepsilon_s}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_s} \quad (3)$$

这里 ε_m 表示 Au 纳米颗粒的介电常数。对于激子发光波长 $\lambda = 870$ nm，对应 $\varepsilon_m = -34.53 + i2.47$ 。由此，金属偶极子的有效偶极矩为

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0\varepsilon_s\alpha(\omega)\mathbf{E}_0 \quad (4)$$

以金属纳米颗粒的有效偶极矩代替激子偶极矩 \mathbf{d}_0 ，我们得到单个金属纳米颗粒的散射电场，表示为

$$\begin{aligned}
E_0^{(R)} &= \frac{k^3}{4\pi\epsilon_0\epsilon_s} \mathbf{P} \left(\frac{1}{kr} + \frac{i}{(kr)^2} - \frac{1}{(kr)^3} \right) e^{ikr} \\
&= \frac{k^6\alpha(\omega)}{16\pi^2\epsilon_0\epsilon_s} \mathbf{d}_0 \left(\frac{1}{(kr)^2} + \frac{2i}{(kr)^3} - \frac{3}{(kr)^4} - \frac{2i}{(kr)^5} + \frac{1}{(kr)^6} \right) e^{i2kr}
\end{aligned} \quad (5)$$

考虑到当量子点激子附近存在许多 Au 纳米颗粒时，每个纳米颗粒都对散射电场有一定的贡献。假设每个 Au 颗粒产生的散射电场的相位相同，此时总散射电场是单个颗粒散射电场的求和，即

$$E^{(R)} = NE_0^{(R)} \quad (6)$$

这里 N 表示等效的金属颗粒数目。将表达式 (5)、(6) 代入 (1) 式，我们得到在金属颗粒影响下，激子的自发辐射速率为

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = 1 + \frac{3k^3N}{8\pi} \text{Im} \left\{ \alpha(\omega) \left[\frac{1}{(kr)^2} + \frac{2i}{(kr)^3} - \frac{3}{(kr)^4} - \frac{2i}{(kr)^5} + \frac{1}{(kr)^6} \right] e^{i2kr} \right\} \quad (7)$$

为了能够将理论计算得到的激子自发辐射速率与实验结果比对，需要测量在 Au 纳米颗粒的影响下，量子点激子的自发辐射的实验数据。我们在实验中发现，TRPL 曲线并不是按照单自然指数的规律衰减（见图 2 测量的 TRPL 曲线），而是满足我们之前推导的类扩展指数函数 $I(t)$ ^[27],

$$I(t) = At^{\beta-1}e^{-\left(\frac{t}{\tau}\right)^\beta} \quad (8)$$

式中 β 和 τ 为拟合参数。由此得到量子点激子的平均寿命

$$\langle\tau\rangle = \frac{\int_0^\infty tI(t)dt}{\int_0^\infty I(t)dt} = \tau\Gamma\left(\frac{1}{\beta} + 1\right) \quad (9)$$

其中 Γ 表示 Gamma 函数。自由空间中的激子的自发辐射速率 γ_0 近似可取为 1ns^{-1} ，因此理论上计算的激子自发辐射速率 γ/γ_0 可以与实验值计算得到的 $1/\langle\tau\rangle$ 进行比较。

3 实验

实验中首先通过分子束外延 (MBE) 在 (001) 半绝缘 GaAs 衬底上生长低密度 InAs/GaAs 量子点样品。样品生长过程的详细信息参见文献 ^[28]。外延生长的

InAs/GaAs 量子点样品结构示意图如图 1(a). 样品包含 300 nm GaAs 缓冲层、100 nm AlAs 牺牲层、D nm 厚度的 GaAs 层（对于不同的量子点样品，D 分别为 10、15、19、25 和 35 nm）、约一个原子层厚度的 InAs 浸润层、InAs 量子点层和 100 nm 的 GaAs 盖层.

采用氢氟酸 (HF) 选择蚀刻掉 AlAs 牺牲层, 将含有量子点的厚度(100+D) nm 的 GaAs 薄膜与 GaAs 衬底分离, 然后将量子点薄膜样品转移到覆盖有直径为 50 nm 的 Au 纳米颗粒的 Si 衬底上. 在此之前, Si 衬底首先需要用丙酮、乙醇和去离子水清洗, 再将 1 g/mL 的 Au 纳米颗粒水溶液 (购自北京中科雷鸣科技有限公司) 稀释成 0.2 g/mL, 并用针管将溶液滴在 Si 衬底上. 衬底上的 Au 纳米颗粒分布通过扫描电子显微镜 (Nova Nano SEM 650) 观察并测量. 含有 Au 纳米颗粒的量子点薄膜样品示意图如图 1(b) 所示.

量子点的 PL 和 TRPL 光谱的测量温度为 5 K. 激发光源为 640 nm 脉冲半导体激光器, 激光脉冲宽度为 40 ps. 共聚焦显微镜物镜 (NA: 0.45) 用于将直径约 2 μm 的光斑聚焦在样品上. PL 光谱信号由同一个显微物镜提取, 经过焦距 0.5 m 的单色仪色散并由 Si-CCD 测量. TRPL 光谱采用时间相关单光子计数 (TCSPC) 设备测量. 为了能够得到准确的实验结果, 除了 $D=10$ nm 的量子点样品的光谱是在 20 MHz 脉冲重复频率和饱和激发功率 63 μW 下测量, 其它间隔层厚度的量子点样品发光都是在 1 MHz 脉冲重复频率和饱和激发功率 0.32 μW 下测量.

4 实验结果与分析

图 1(c) 为扫描电子显微镜下观察到的 Au 纳米颗粒. 可以看到, 衬底上 Au 颗粒以数个为一组团聚在一起, 颗粒的大小均匀性较好, 形状大致为球形.

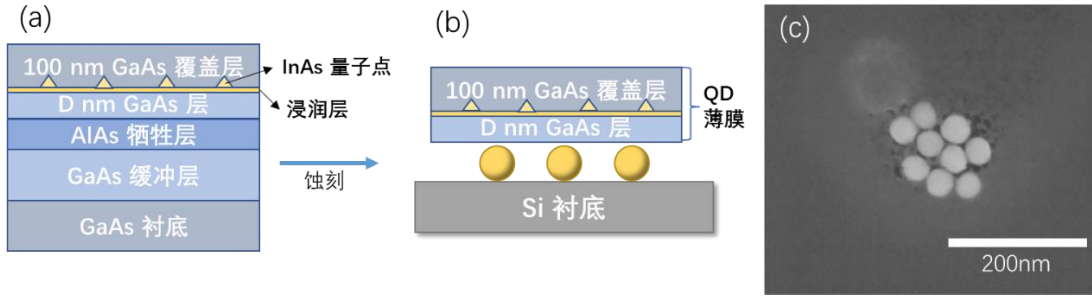


图 1 (a) MBE 外延生长的 InAs/GaAs 量子点样品结构示意图；(b) 刻蚀剥离后量子点薄膜样品放置于 Au 纳米颗粒上的示意图；(c) 扫描电子显微镜下 Au 纳米颗粒照片。

Fig. 1. (a) Schematic diagram of the MBE epitaxial growth of InAs/GaAs quantum dot sample structure; (b) Schematic diagram of the quantum dot film placed on Au nanoparticles; (c) Au nanoparticle photograph taken by a scanning electron microscope.

图 2(a)、(c)、(e)、(g) 和 (i) 表示量子点薄膜样品放置在 Au 纳米颗粒上后测量得到的 PL 光谱，分别对应 GaAs 层厚度 D 为 10、15、19、25 和 35 nm。从 PL 光谱图可以看出，宽的 PL 发光峰对应量子点浸润层的发光峰，PL 峰值在 $\sim 870\text{nm}$ 。非常窄的一些 PL 发光线对应单量子点的发光，自组织量子点的尺寸涨落会造成量子点的发光峰位不同，因此这些发光线随机的分布在浸润层发光峰的低能一侧。在饱和激发功率下，不同 GaAs 层厚度 D 的 PL 光谱强度不同。与厚度 $D = 10\text{ nm}$ 的量子点样品相比，其它 GaAs 层厚度 D 的量子点 PL 荧光峰强度都有明显的增加，特别是厚度 $D = 19\text{ nm}$ 的 PL 荧光峰的强度最强，此时对应的浸润层 PL 荧光峰值的强度是最弱的。

与量子点 PL 光谱相对应，图 2(b)、(d)、(f)、(h) 和 (j) 显示对应量子点样品的 TRPL 光谱。这些 TRPL 光谱对应图 2(a)，(c)，(e)，(g) 和 (i) 标识出的量子点发光线。可以看出，当 GaAs 厚度 $D = 15、19、25$ 和 35 nm 时，TRPL 曲线具有较长的荧光寿命，可以看出 TRPL 曲线不能用单自然指数来拟合。但可以用方程 (8) 来拟合实验曲线，由此得到拟合参数 β 和 τ ，由公式 (9) 计算量子点激子的寿命。对应 GaAs 间隔层厚度 $D = 10、15、19、25$ 和

35 nm 时, 激子的平均寿命为 $\langle\tau\rangle = (0.88 \pm 0.02)$ 、 (28.1 ± 0.2) 、 (1150 ± 8) 、 (50 ± 2) 和 (42.2 ± 0.4) ns. 寿命的倒数 $1/\langle\tau\rangle$ 对应量子点激子的自发辐射速率, 自发辐射速率作为 GaAs 层厚度 D 的函数显示在图 3 中, 实验数据点以空心圆表示. 根据方程 (7), 考虑到具体 Au 纳米颗粒的尺度和 Au 的介电常数, 当取等效的金属颗粒数目 $N = 2.601$ 时, 计算曲线很好地描述激子的自发辐射速率, 如图 3 中实线所示.

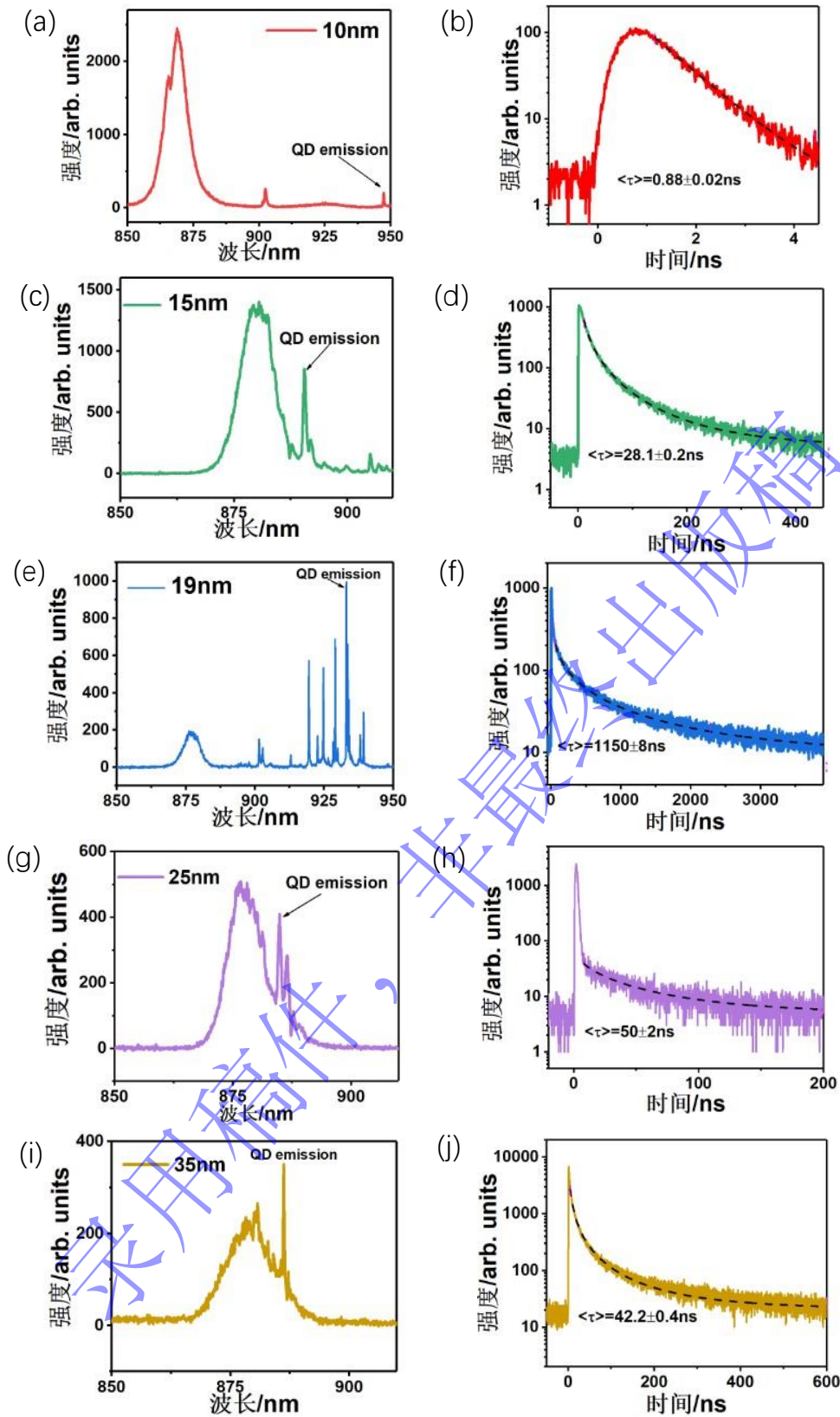


图 2 Au 纳米颗粒作用下不同 GaAs 间隔层厚度量子点样品的 PL 和 TRPL 光谱图. (a)、(c)、(e)、(g) 和 (i) 分别对应 GaAs 层厚度 $D=10$ 、15、19、25 和 35 nm 的量子点样品 PL 谱线. 图中以“QD emission”标识出了用于后续 TRPL 谱线测量的量子点发光峰, 其中 GaAs 层厚度 $D=19$ nm 的量子点样品存在多个量子点的发光峰, 其中强度最大的发光峰用于 TRPL 谱线的测量. (b)、(d)、(f)、(h) 和 (j) 分别对应 GaAs 层厚度为 $D=10$ 、15、19、25 和 35 nm 的量子点样品的 TRPL 谱线, 黑色虚线为方程 (8) 的拟合结果, 由此得到不同 D 值

量子点发光的寿命. 其中 $D=10$ nm 的量子点样品 PL 和 TRPL 是在 20 MHz 重复频率和饱和激发功率下测量, 其它量子点样品 PL 和 TRPL 是在 1 MHz 重复频率和饱和激发功率下测量

Fig. 2. PL and TRPL spectra of quantum dot samples with different GaAs spacer thickness under the influence of Au nanoparticles. (a), (c), (e), (g) and (i) are the PL spectra of QDs with GaAs layer thicknesses of $D=10, 15, 19, 25$ and 35 nm, respectively. In figures, the "QD emissions" are used for further TRPL measurements. The QD sample with GaAs thickness of $D=19$ nm shows several emission lines, where the "QD emission" with a big emission intensity is selected for TRPL measurement. (b), (d), (f), (h) and (j) are the TRPL spectra of QDs with GaAs layer thicknesses of $D=10, 15, 19, 25$ and 35 nm, respectively. The black dashed lines are the fitting results by using Eq.(8) and the obtained lifetimes are shown in the corresponding graphs. The PL and TRPL of QD samples with $D=10$ nm were measured at a repetition frequency of 20 MHz and saturation excitation power, and the PL and TRPL of other QD samples were measured at a repetition frequency of 1 MHz and saturation excitation power.

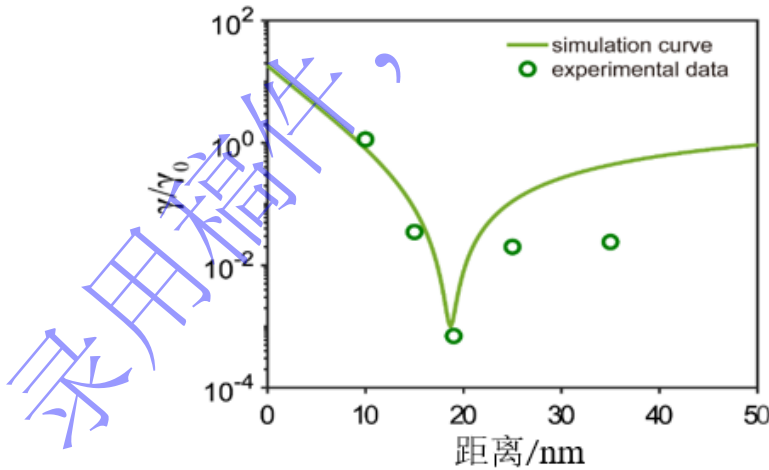


图 3 在 Au 纳米颗粒影响下, 量子点激子自发辐射速率随 GaAs 间隔层厚度 D 的变化. 其中曲线为理论模拟计算结果, 空心圆为实验数据

Fig. 3 The spontaneous emission rate of QD excitons as a function of a thickness D of the GaAs spacer layer under the influence of Au nanoparticles. The solid curve is the theoretical calculation result, and the open circles are the experimental data.

由图 3 可知, 在 Au 纳米颗粒的影响下, 当量子点激子离 Au 纳米颗粒表面距离 $D = 15\text{--}35\text{ nm}$ 时, 量子点浸润层激子的自发辐射速率相对于没有 Au 纳米颗粒时的情况而言被抑制, 而且这种抑制效应在距离 $D = 19\text{ nm}$ 时为最大, 此时激子的自发辐射速率为没有 Au 纳米颗粒时量子点样品的 $\sim 10^{-3}$ 倍.

在量子点 TRPL 曲线中, 观察到长寿命量子点激子的发光机制是由于在量子点浸润层中存在长寿命的激子. 这些长寿命的激子只能通过扩散而被附近的量子点俘获而在量子点内复合发光, 导致在量子点中观察到的长寿命荧光. 这也说明为什么长寿命激子的 TRPL 曲线不能用单自然指数拟合, 而可以用类扩展指数函数来描述^[27]. 而且, 作为 GaAs 间隔层 D 的函数, 实验值与理论模拟计算符合的很好, 进一步证实了长寿命量子点激子的发光来自于量子点浸润层中存在长寿命的激子态. 因此, 总结图 2 和 3 的实验结果, 以及实验与理论模拟计算的比较, 实验观察到的量子点长寿命激子发光的物理机制为: 在初始 ($t \sim 0$) 脉冲激光的激发下, 量子点和浸润层中均有初始激子占据, 量子点基态只能有单激子或双激子占据, 其激子寿命 $\sim 1\text{ ns}$, TRPL 曲线可以用单自然指数拟合, 与是否存在 Au 纳米颗粒无关^[21, 27]. 但浸润层为二维体系, 具有很大的态密度, 可以允许大量的激子占据. 理论分析显示, 当存在 Au 纳米颗粒时, 颗粒会散射激子的辐射场, 由此产生的散射场会反作用于浸润层中的发光激子, 由于散射场的位相与激子辐射场的位相相反, 降低了偶极子所在处的 LDOS, 使得浸润层中的激子自发复合受到抑制, 特别是当 GaAs 间隔层 $D \sim 19\text{ nm}$ 时. 浸润层中的长寿命激子逐渐地被附近的量子点俘获而在量子点中复合发光. 这也体现在相同的饱和激发功率下, 浸润层的 PL 发光强度比没有 Au 纳米颗粒时降低了. 而对应量子点的 PL 荧光强度增加了 (如图 2 (e) 所示).

5 结 论

采用 MBE 外延生长 InAs/GaAs 量子点样品，使用 HF 剥离外延生长的量子点样品，得到含有量子点的薄膜样品，并将量子点薄膜转移到覆盖有 Au 纳米颗粒的硅片上。改变量子点浸润层离 Au 纳米颗粒表面的距离 D ，测量了量子点激子的 PL 和 TRPL 光谱。实验结果显示，当 $D = 19 \text{ nm}$ 时，量子点浸润层激子的自发辐射速率减小到原先的 $\sim 10^{-3}$ 。实验上观察到了长寿命量子点激子发光的物理机制为：Au 纳米颗粒的散射场反作用于浸润层中发光激子，由于散射场的位相与激子辐射场的位相相反，从而抑制浸润层激子的自发辐射。浸润层中长寿命的激子逐渐地被量子点俘获而在量子点中复合发光，导致在量子点中观察到长寿命激子的延迟发光现象。

参考文献

- [1] Cao Z W, Zhao G, Zhang S H, Feng X Y, Peng J Y 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 230301 (in Chinese) [曹正文, 赵光, 张爽浩, 冯晓毅, 彭进业 2016 *物理学报* **65** 230301]
- [2] Zhao Y H, Qian C J, Tang J, Sun Y, Peng K, Xu X L 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 134206 (in Chinese) [赵彦辉, 钱琛江, 唐静, 孙悦, 彭凯, 许秀来 2016 *物理学报* **65** 134206]
- [3] Barnes W L 1998 *J. Mod. Optic.* **45** 661
- [4] Anger P, Bharadwaj P, Novotny L 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 113002
- [5] Purcell E M 1995 *Confined Electrons and Photons: New Physics and Applications* (Boston: Springer) pp839-839
- [6] Parker J A, Sugimoto H, Coe B, Eggena D, Fujii M, Scherer N F, Gray S K, Manna U 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 097402
- [7] Drexhage K H 1974 *Progress in Optics* (Amsterdam: North Holland) pp163-232
- [8] Horng J, Chou Y-H, Chang T-C, Hsu C-Y, Lu T-C, Deng H 2019 *Optica* **6** 1443

- [9] Zhou Y, Scuri G, Sung J, Gelly R J, Wild D S, De Greve K, Joe A Y, Taniguchi T, Watanabe K, Kim P, Lukin M D, Park H 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 027401
- [10] Chew H 1987 *J. Chem. Phys.* **87** 1355
- [11] Klimov V V, Ducloy M, Letokhov V S 1996 *J. Mod. Optic.* **43** 2251
- [12] Novotny L 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 3806
- [13] Sun G, Khurgin J B, Soref R A 2008 *J. Opt. Soc. Am. B* **25** 1748
- [14] Lakowicz J r, Fu Y 2009 *Laser Photonics Rev.* **3** 221
- [15] Bennett R 2015 *Phys. Rev. A* **92** 022503
- [16] Kraus W A, Schatz G C 1983 *J. Chem. Phys.* **79** 6130
- [17] Maier S A 2007 *Plasmonics: Fundamentals and Applications* (New York: Springer) pp65-68
- [18] Shahbazyan T V 2018 *Phys. Rev. B* **98** 115401
- [19] Su D, Dou X M, Ding K, Wang H Y, Ni H Q, Niu Z C, Sun B Q 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 235201 (in Chinese) [苏丹, 窦秀明, 丁琨, 王海艳, 倪海桥, 牛智川, 孙宝权 2015 *物理学报* **64** 235201]
- [20] Wang H Y, Dou X M, Ni H Q, Niu Z C, Sun B Q 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 027801 (in Chinese) [王海艳, 窦秀明, 倪海桥, 牛智川, 孙宝权 2014 *物理学报* **63** 027801]
- [21] Chen H, Huang J, He X, Ding K, Ni H, Niu Z, Jiang D, Dou X, Sun B 2020 *ACS Photonics* **7** 3228
- [22] Zhuo Z, Chen H, Huang J, Li S, Wang J, Ding K, Ni H, Niu Z, Jiang D, Dou X, Sun B 2021 *J. Phys. Chem. Lett.* **12** 3485
- [23] Butov L V, Lai C W, Ivanov A L, Gossard A C, Chemla D S 2002 *Nature* **417** 47
- [24] Butov L V, Gossard A C, Chemla D S 2002 *Nature* **418** 751
- [25] Berman P R 1994 *Cavity quantum electrodynamics* (Boston: Academic Press) pp5-9
- [26] Jackson J D 1974 *Classical Electrodynamics* (New York: J. Wily and Sons)

pp410-412

[27]Huang J, Chen H, Zhuo Z, Wang J, Li S, Ding K, Ni H, Niu Z, Jiang D, Dou X,
Sun B 2021 *Chinese Phys. B* **30** 097805

[28]Yu Y, Shang X J, Li M F, Zha G W, Xu J X, Wang L J, Wang G W, Ni H Q, Dou X,
Sun B, Niu Z C 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 201103

录用稿件，
非最终出版稿

Controlling Exciton Spontaneous Emission of Quantum Dots by Au nanoparticles^{*}

Li Yuan-He¹⁾²⁾ Zhuo Zhi-Yao¹⁾²⁾ Wang Jian¹⁾²⁾ Huang Jun-Hui¹⁾²⁾ Li Shu-Lun¹⁾²⁾ Ni Hai-Qiao¹⁾²⁾

Niu Zhi-Chuan¹⁾²⁾ Dou Xiu-Ming^{1)2)†} Sun Bao-Quan^{1)2)†}

1) (State Key Laboratory of Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors,

Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

2) (College of Materials Science and Optoelectronic Technology, University of Chinese Academy

of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract

As an ideal single-photon source, quantum dots (QDs) can play a unique role in the field of quantum information. Controlling QD exciton spontaneous emission can be achieved by anti-phase coupling between QD exciton dipole field and Au dipole field after QD film was transferred onto the Si substrate covered by Au nanoparticles. In the experiments, the studied InAs/GaAs QDs were grown by molecular beam epitaxy (MBE) on a (001) semi-insulation substrate. A film containing QDs with different GaAs thickness was separated from the GaAs substrate by etching away the AlAs sacrificial layer and transferred the QD film to the silicon wafer covered by Au nanoparticles with a diameter of 50 nm. The distance D (thickness of GaAs) from the surface of the Au nanoparticles to the QD layer is 10, 15, 19, 25, and 35 nm. A 640 nm pulsed semiconductor laser with a 40 ps pulse length was used to excite the QD samples for

measuring QD exciton photoluminescence (PL) and time-resolved PL (TRPL) spectra at 5 K. It is found that when the distance D is 15-35nm the spontaneous emission rate of exciton is suppressed. And when D is close to 19 nm, the QD spontaneous emission rate decreases to $\sim 10^{-3}$, which is consistent with the theoretical calculation. The physical mechanism of long-lived exciton luminescence observed in the experiment is due to the fact that Au nanoparticles scatter the light field of the exciton radiation in the QD wetting layer, and the phase of the scattered field is opposite to the phase of the exciton radiation field. Therefore, the destructive interference between the exciton radiation field and scattering field of Au nanoparticles results in long-lived exciton emission observed in the experiment.

Keywords: Quantum dots, Spontaneous emission rate, Metal Nanoparticles, Long-lived excitons

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61827823, 11974342)