

# 等离子体增强InAs单量子点荧光辐射的研究\*

王海艳 窦秀明 倪海桥 牛智川 孙宝权†

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

(2013年8月30日收到; 2013年10月10日收到修改稿)

通过测量光致发光(PL)谱、PL时间分辨光谱及不同激发功率下PL发光强度,研究了低温(5 K)下等离子体对InAs单量子点PL光谱的增强效应.采用电子束蒸发镀膜技术在InAs量子点样品表面淀积了5 nm厚度的金膜,形成纳米金岛膜结构.实验发现,金岛膜有利于量子点样品发光强度的增加,最大PL强度增加了约5倍,其主要物理机理是金岛膜纳米结构提高了量子点PL光谱的收集效率.

**关键词:** InAs单量子点, 金岛膜纳米结构, 荧光增强

**PACS:** 78.67.Hc, 52.25.Os, 32.50.+d

**DOI:** 10.7498/aps.63.027801

## 1 引言

半导体量子点是一种三维尺寸都受限的量子结构,这种结构限制了载流子的空间分布和运动,从而具有一些独特的物理性质,如分立的能级、态密度类似于 $\delta$ 函数等<sup>[1]</sup>.量子点在单光子发射器件方面具有很好的应用前景.

金属纳米结构的表面等离子体共振模式拥有丰富而独特的物理性质,使光场局域在亚波长尺寸范围内,具有强烈的局域化电磁场增强效应<sup>[2]</sup>.改变金属的纳米尺寸可以调节表面等离子体的共振波长<sup>[3,4]</sup>,已有报道观察到表面等离子激射现象<sup>[5,6]</sup>.金属纳米结构可以改变光场的辐射方向,形成光场的定向发射<sup>[7-9]</sup>.因此,金属纳米结构被广泛应用于研究激发光场增强、荧光发射耦合及其与偶极发光间的相互作用,如利用塔姆等离激元模式<sup>[10,11]</sup>、纳米颗粒<sup>[12,13]</sup>、纳米天线<sup>[14-16]</sup>、金属膜<sup>[17,18]</sup>、纳米结构<sup>[19]</sup>和等离子体共振腔<sup>[20,21]</sup>等提高量子点的荧光辐射强度、形成荧光定向发射、提高荧光收集效率等.同时,金属纳米结构也会减小荧光的寿命,减弱荧光发光强度或造成荧光的猝灭<sup>[22]</sup>.最近,Pavaskar等<sup>[23]</sup>研究了5 nm厚的金岛

膜和银岛膜的表面拉曼增强效应,其增强因子分别为16和19.Pfeiffer等<sup>[24]</sup>利用金属纳米颗粒与GaAs单量子点之间的耦合研究了金属纳米结构对量子点光致发光(PL)机理的影响.研究发现:当纳米结构仅与激发光场共振时,量子点荧光寿命保持不变;当纳米结构与量子点荧光共振时,可提高量子点产率,同时量子点荧光寿命减小.

本文利用电子束蒸发镀膜技术在量子点样品表面淀积了5 nm厚的金岛膜,在低温(5 K)下,分别测量了有无金岛膜的InAs单量子点的PL谱、PL时间分辨光谱及不同激发功率下的荧光强度,分析了5 nm厚的金岛膜对InAs单量子点荧光增强的物理机理.

## 2 实验

量子点样品结构如图1(a)所示,通过分子束外延方法在GaAs衬底上生长了20对Al<sub>0.9</sub>Ga<sub>0.1</sub>As/GaAs组成的分布布拉格反射镜,InAs量子点处于 $2\lambda$  GaAs腔(腔长为 $2\lambda$ )的波腹位置.量子点的密度非常低,每平方微米内小于1个量子点,因此可以通过显微光谱系统分别测量单个量子点.采用电子束蒸发镀膜技术在量子点样品

\* 国家自然科学基金(批准号: 11074246)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: bqsun@semi.ac.cn

表面沉积了 5 nm 厚的金膜, 并利用扫描电子显微镜 (SEM) 观测样品表面的形貌, 结果如图 1 (b) 所示. 从图 1 (b) 可以看出, 5 nm 厚的金膜呈岛状分布, 间隙在 10 nm 左右, 金岛尺度分布从若干纳米到几十纳米.

在低温 PL 光谱实验中, 量子点样品置于无液氦低温光学恒温器中, 温度为 5 K. 激发光源为 PicoQuant 公司生产的 LDH 型连续或脉冲工作模式的半导体激光器, 波长为 640 nm, 脉冲重复频率为 80 MHz. 光谱测量采用共聚焦显微系统, 物镜的数值孔径为 0.5, 光谱测量由 500 mm 的光谱仪和 Si-电荷耦合器件探测器完成. 单光子时间分辨光谱采用单光子时间关联技术, 单光子探测器为 Perkin Elmer 公司生产的 SPCM-AQR-14 型单

光子雪崩二极管.

### 3 实验结果与分析

为了研究金属表面等离子体对 InAs 单量子点发光强度及发光寿命的影响, 本文分别测量了有金岛膜和无金岛膜的单量子点样品的荧光光谱、荧光时间分辨光谱和不同激发功率下量子点的荧光光谱. 图 2 (a) 和 (b) 分别是在低温 (5 K) 下测量得到的有金岛膜和无金岛膜的单量子点的荧光光谱, 激发功率都是 0.2 nW. 实验结果显示, 有金岛膜的量子点样品的发光强度远大于无金岛膜的量子点样品的发光强度, 说明金岛膜对量子点的发光有很大的影响.

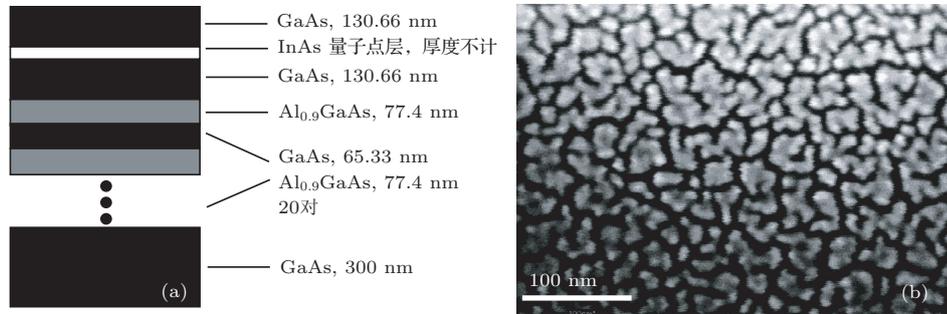


图 1 量子点样品的结构和表面形貌 (a) 样品结构示意图; (b) 样品表面 SEM 照片

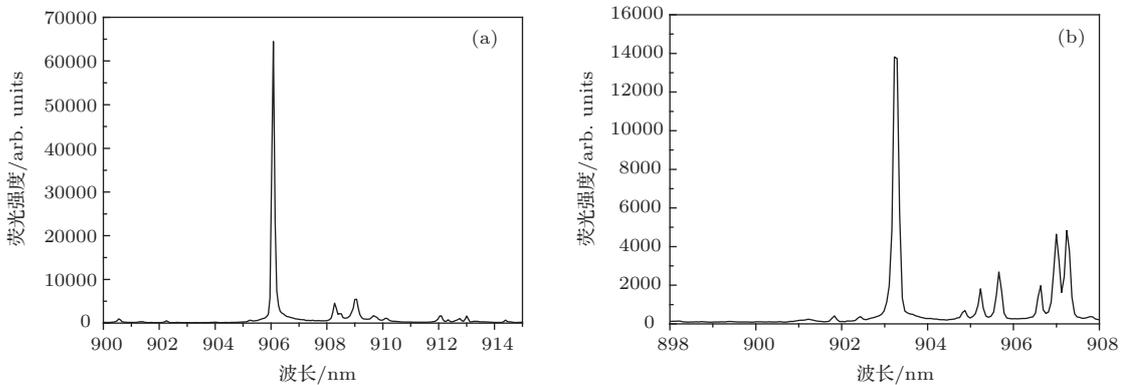


图 2 InAs 单量子点的 PL 光谱 (a) 有金岛膜量子点样品的 PL 光谱; (b) 无金岛膜量子点样品的 PL 光谱

图 3 (a)–(c) 给出了测量得到的量子点的 PL 时间分辨光谱, 其中图 3 (a) 和 (b) 是有金岛膜的量子点的实验结果, 图 3 (c) 是无金岛膜的量子点的实验结果. 图中空心圆为测量系统的时间分辨响应曲线, 用单指数拟合得到测量系统的时间分辨率为 300 ps; 实心圆为量子点的荧光强度衰减曲线. 从图 3 可以看出, 有金岛膜的量子点样品的荧光寿命变化较大, 有些量子点的发光寿命接近

于测量系统的时间分辨率 (如图 3 (b) 所示的量子点 QD2), 有些量子点的发光寿命远大于测量系统的时间分辨率, 与无金岛膜量子点的发光寿命相当, 如图 3 (a) 和 (c) 所示. 为了得到量子点的实际发光寿命, 需要对测量得到的量子点荧光衰减曲线进行去卷积计算, 图 3 (d) 分别给出了去卷积后无金岛膜的量子点样品 (8 个量子点, 图中用空心圆表示) 和有金岛膜的量子点样品 (8 个量子点, 图中用

实心圆表示)的荧光寿命. 实验结果显示, 无金岛膜的量子点的荧光寿命分布在600—840 ps, 如典型的两个量子点荧光寿命为840 ps (QD6), 660 ps (QD7). 而有金岛膜的量子点的荧光寿命变化较

大, 分布在270—740 ps, 如典型的5个量子点荧光寿命为500 ps (QD1), 270 ps (QD2), 670 ps(QD3), 490 ps(QD4), 690 ps(QD5). 这说明金岛膜对量子点的复合发光过程有较大的影响.

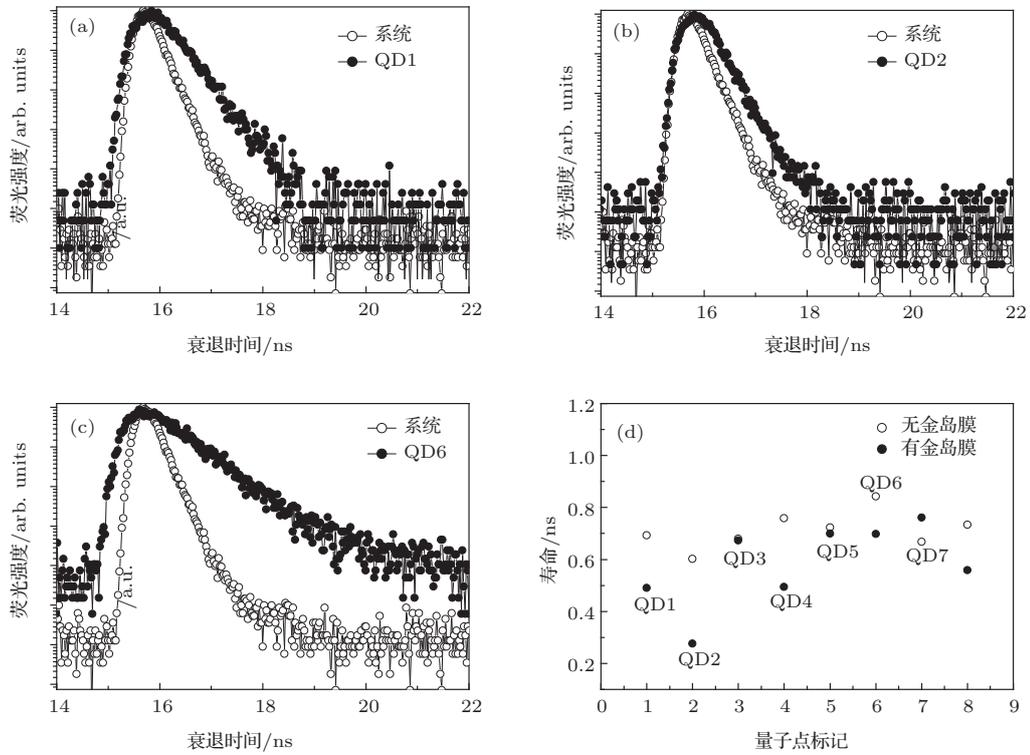


图3 有金岛膜和无金岛膜的量子点的荧光时间分辨光谱和荧光寿命 (a) 有金岛膜的量子点样品 QD1 的荧光时间分辨光谱; (b) 有金岛膜的量子点样品 QD2 的荧光时间分辨光谱; (c) 无金岛膜的量子点样品 QD6 的荧光时间分辨光谱; (d) 16 个有金岛膜和无金岛膜的量子点样品的荧光寿命

图4给出了量子点PL光谱的荧光积分强度随激发功率的变化, 其中QD1—QD5为有金岛膜的量子点样品, QD6和QD7为无金岛膜的量子点样品, 这里量子点QD1—QD7的发光波长分布从900—920 nm, 由于光谱测量系统中的一些器件(探测器、光栅等)对不同波长的探测效率不同, 图4给出的实验数据是考虑到此因素后的修正结果. 量子点QD1—QD5的发光波长分别是906, 913, 905, 918, 905.4 nm. 从图4可以看出, 发光波长较短的量子点QD1和QD3的光谱积分强度较强, 发光波长较长的量子点QD2和QD4的光谱积分强度较弱, 另外, 对于发光波长较短的量子点QD5, 其光谱积分强度与无金岛膜的量子点光谱积分强度接近. 在相同的激发功率(0.2 nW)下, 有金岛膜的量子点样品(QD1, QD3)的PL光谱积分强度明显大于无金岛膜的量子点样品(QD6, QD7)的PL光谱积分强度, 而它们对应的荧光饱和激发功率基本相同, 约为0.4 nW. 但是, 有金岛膜的量子点样品

的荧光强度比无金岛膜的量子点样品的荧光强度大5.5倍(QD1)或2.8倍(QD3). 实验还发现金岛膜对量子点发光强度起抑制作用, 如量子点QD2的饱和激发功率约为1 nW, 远大于量子点QD1和QD3的饱和激发功率, 且其发光强度远小于量子点QD1和量子点QD3的发光强度. 此外, 我们还发现金岛膜对有些量子点(量子点QD4和QD5)的PL光谱没有明显影响.

实验中测量得到的量子点PL光谱强度 $I_{PL}$ 正比于光激发产生的载流子浓度 $N$  (在激光场的激发功率 $P_{exc}$ 小于饱和激发功率条件下,  $N$ 正比于 $P_{exc}$ )和激子复合发光概率 $1/\tau_r$  ( $\tau_r$ 为激子的复合寿命), 即 $I_{PL} \propto N/\tau_r$ . 因此, 对于无金岛膜耦合的量子点样品, 其本征激子复合发光寿命约为700 ps (图3(d)), 在相同的激发功率下PL光谱强度及饱和激发功率在同数量级, 如图4所示的量子点QD6和QD7的实验结果. 对于有金岛膜的量子点样品QD1, QD2和QD3, 测量得到的量子点发光寿命、

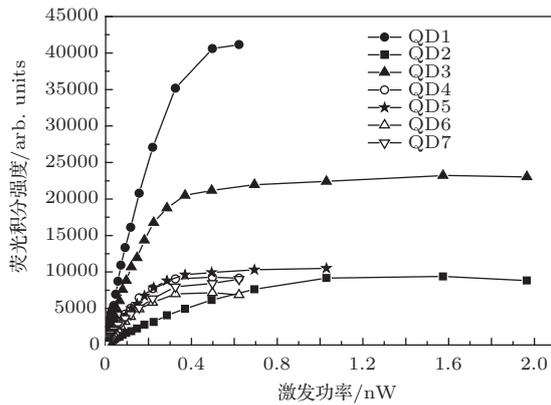


图4 量子点荧光积分强度随激发功率的变化

发光强度和饱和激发功率均受到金岛膜的调制作用. 这主要表现在以下三个方面: 一是局域激光场增强<sup>[24]</sup>, 金岛膜纳米结构允许光场被局域在亚波长尺寸内, 尤其在某些尖角或者狭缝处, 增加了电场局域化强度, 将导致饱和激发功率降低; 二是量子点偶极跃迁与金岛膜耦合导致荧光寿命减小, 属于激子的非辐射复合过程, 同时发光能量被金岛膜吸收而损耗<sup>[22]</sup>, 导致发光强度减小及饱和激发功率增加; 三是金岛膜结构作为量子点发光的定向耦合输出天线, 增加了PL收集效率, 从而得到较高的光谱收集效率<sup>[15]</sup>, 但对饱和激发功率和荧光寿命的影响较小. 金岛膜与量子点发光的耦合与量子点的发光波长和量子点样品中金岛膜的具体纳米结构有关. 不同量子点对应的金岛膜的纳米结构不同, 直接影响量子点的发光寿命和荧光收集效率. 综合分析图3和图4所示的量子点QD1和QD3的寿命、荧光收集效率和饱和激发功率可知, 量子点QD1和QD3的发光寿命接近于无金岛膜结构的量子点样品的寿命, 分别是500和670 ps, 同时其饱和激发功率也与无金岛膜结构的量子点样品相同, 约为0.4 nW, 只是发光强度有明显的增加, 荧光饱和和积分强度分别是无金岛膜的量子点荧光饱和和积分强度的5.5倍和2.8倍. 因此, 我们认为荧光增强效应的主要物理机理是金岛膜结构作为有效的量子点发光的定向耦合输出天线增加了量子点的PL收集效率, 从而得到较高的光谱收集效率. 实验发现, 多数量子点光谱测量得到的统计结果显示金岛膜结构主要是增强了量子点光谱的收集效率, 提供了一种有效制备明亮的单光子源的方法. 同时也观察到少量像QD2一样的量子点存在着发光寿命变小(约为270 ps)、饱和激发功率增加(约为1 nW)、总的荧光强度变弱的现象. 这是因为其发光能量被金岛膜吸收而损耗, 无辐射复合起主要作

用. 另外, 还观察到了一些不受金岛膜影响的量子点, 如量子点QD4, QD5, 其荧光寿命、饱和功率以及PL谱积分强度都与无金岛膜的量子点的相应结果相当.

## 4 结 论

利用电子束蒸发镀膜技术在InAs量子点样品表面蒸发了5 nm厚度的金岛膜, 分别测量了有金岛膜和无金岛膜的单量子点的PL谱、PL时间分辨光谱及不同激发功率下的荧光强度. 实验结果显示, 金岛膜对量子点发光寿命、发光强度和饱和激发功率有一定的调制作用. 量子点统计测量结果证实金岛膜纳米结构有利于提高量子点PL光谱的收集效率. 这为制备明亮的单光子源提供了一种有效的方法.

## 参考文献

- [1] Michler P 2009 *Single Semiconductor Quantum Dots* (Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag) pp3, 4
- [2] Valev V K, De Clercq B, Biris C G, Zheng X, Vandendriessche S, Hojeij M, Denkova D, Jeyaram Y, Panoiu N C, Ekinici Y, Silhanek A V, Volskiy V, Vandebosch G A E, Ameloot M, Moshchalkov V V, Verbiest T 2012 *Adv. Mater.* **24** 208
- [3] Li J, Gu Y, Zhou F, Li Z Y, Gong Q H 2009 *J. Mod. Opt.* **56** 1396
- [4] Zhang X F, Yan X 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 037805 (in Chinese)[张兴坊, 闫昕 2013 物理学报 **62** 037805]
- [5] Zhou W, Dridi M, Suh J Y, Chul H K, Dick T C 2013 *Nature Nanotechnol.* **8** 506
- [6] van Beijnum F, van Veldhoven P J, Geluk E J, de Dood M J A, Hooft G W, van Exter M P 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 206802
- [7] Lin J, Dellinger J, Genevet P, Cluzel B, Forne F D, Capasso F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 093904
- [8] Belacel C, Habert B, Bigourdan F, Marquier F, Hugonin J P, Michaelis S, Lafosse X, Coolen L 2013 *Nano Lett.* **13** 1516
- [9] Martino G D, Sonnefraud Y, Stéphane K C, Tame M 2012 *Nano Lett.* **12** 2504
- [10] Gazzano O, de Vasconcellos S M, Gauthron K, Symonds C, Bloch J, Voisin P, Bellessa J, Lemaître A, Senellart P 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 247402
- [11] Gazzano O, de Vasconcellos S M, Gauthron K, Symonds C, Voisin P, Bellessa J, Lemaître A, Senellart P 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 232111
- [12] Yuan J Y, Jin C Y, Skacel M, Urbańczyk A, Xia T, van Veldhoven P J, Notzel R 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 191111
- [13] Eyal C H, Garnett W B, Iddo P, Joseph S, Israel B J 2012 *Nano Lett.* **12** 4260

- [14] Busson M P, Rolly B, Stout B, Bonod N, Bidault S 2012 *Nature Commun.* **3** 962
- [15] Kühn S, Hakanson U, Rogobete L, Sandoghdar V 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 017402
- [16] Esteban R, Teperik T V, Greffet J J 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 026802
- [17] Sharonda J L, Mason R M, Marcus J, Patrick J M 2013 *Nano Lett.* **13** 1662
- [18] Salomon A, Gordon R J, Prior Y, Seideman T, Sukharev M 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 073002
- [19] Gu Y, Huang L, Martin O J F, Gong Q H 2010 *Phys. Rev. B* **81** 193103
- [20] de Leon N P, Shields B J, Yu C L, Englund D E, Aki-mov A V, Lukin M D, Park H 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 226803
- [21] Du L X, Hu L, Zhang B P, Cai X K, Lou T G, Wu H Z 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 117803 (in Chinese)[杜凌霄, 胡炼, 张兵坡, 才玺坤, 楼腾刚, 吴惠桢 2011 物理学报 **60** 117803]
- [22] Anger P, Bharadwaj P, Novotny L 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 113002
- [23] Pavaskar P, Hsu I K, Theiss J, Hung W H, Cronin S B 2013 *J. Appl. Phys.* **113** 034302
- [24] Pfeiffer M, Lindfors K, Armando P A, Schmidt O G, Giessen H, Lippitz M 2012 *Phys. Status Solidi B* **249** 678
- 2012 *Phys. Status Solidi B* **249** 678

## Photoluminescence from plasmon-enhanced single InAs quantum dots\*

Wang Hai-Yan    Dou Xiu-Ming    Ni Hai-Qiao    Niu Zhi-Chuan    Sun Bao-Quan<sup>†</sup>

(State Key Laboratory for Superlattices and Microstructure, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

( Received 30 August 2013; revised manuscript received 10 October 2013 )

### Abstract

Photoluminescences (PLs), time-resolved PL spectra, and PL intensities each as a function of excitation power from plasmon-enhanced single InAs quantum dots (QDs) are measured for studying the effect of photoluminescence enhancement at a low temperature of 5 K. The 5 nm gold films are deposited on the surface of InAs QD sample by using electron beam evaporation technique, which form nano-gold island membrane structures. It is found that the gold island film is conducive to the enhancement of QD PL intensity and the maximal PL intensity increases up to about 5 times the PL intensity without gold island film. The physical mechanism of the PL increase is that the gold island film nanostructure can improve the QD PL collection efficiency which is very important for realizing the bright single photon sources.

**Keywords:** single InAs quantum dots, nano-gold island membrane structures, photoluminescence enhancement

**PACS:** 78.67.Hc, 52.25.Os, 32.50.+d

**DOI:** 10.7498/aps.63.027801

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grand No. 11074246).

† Corresponding author. E-mail: [bqsun@semi.ac.cn](mailto:bqsun@semi.ac.cn)