

电场调谐 InAs 单量子点的发光光谱^{*}

常秀英 窦秀明 孙宝权[†] 熊永华 倪海桥 牛智川

(中国科学院半导体研究所超晶格与微结构国家重点实验室, 北京 100083)

(2009 年 7 月 10 日收到; 2009 年 12 月 22 日收到修改稿)

采用稳态和时间分辨发光光谱, 研究了生长在 p-i-n 二极管结构内的 InAs 单量子点发光光谱的电场调谐特性. 随着电场强度的增加, 观察到量子点中激子发光的 Stark 效应. 通过选择不同波长的激光线激发量子点样品, 发现随着电场强度的增加导致量子点发光强度的减弱, 这是由于量子点俘获载流子概率的减小所致, 而激子寿命的增加源于电场导致激子的 Stark 效应.

关键词: InAs 单量子点, Stark 效应, 电子-空穴分离

PACC: 7855, 7847, 7845

1. 引 言

InAs 单量子点的许多光谱结构特性与单原子、单分子十分相似, 是在固态量子体系中实现单量子态研究的理想体系, 如单量子点的发光光谱是非经典的. 在单光子发射、量子计算、量子通信等研究领域具有重要的潜在应用价值^[1-4]. 单量子点具有类原子的壳层结构, 即具有 s, p, d, ... 壳层结构, 并且在低温下具有非常窄的发光峰, 发光峰的半高宽约为几十微电子伏^[5]. 此外, 在结构对称性和光谱特性上又区别于单原子、单分子系统, 这种区别主要来源于单量子点本身的几何结构对称性和电子-空穴系统的多体效应^[5,6]. 这些与单量子点光谱相关的深入研究有助于推动基于单量子点的单光子发射和光储存等量子器件研究^[7]. 外加电场会影响放置在 p-i-n 结构或肖特基结构内的量子点光学性质, 也会导致量子点内量子态的重新分布和电子的重新占据^[8], 调制量子点携带电荷的能力^[9-11]. 在量子点光谱实验中, 有用电子隧穿的机制来解释电场对量子点光学性质的影响^[12-15], 也有用电子-空穴波函数的分离机制来解释电场对系综量子点光学性质的影响^[16]. 本文研究了电场对单个量子点光学性质的影响, 通过比较不同波长激发下电场对单个量子点光学性质的调制作用, 说明电子-空穴空间

分离和单量子点对电子空穴的俘获导致量子点发光强度的减弱和猝灭. 通过光致发光光谱和时间分辨光谱研究了在 p-i-n 结构内 InAs 单量子点中激子的发光光谱和相应发光动力学. 我们观测到单量子点的 Stark 效应, 通过选择激光波长激发量子点样品, 研究量子点发光寿命与外加电场强度的关系, 确认量子点发光强度减弱的原因主要来自于不同电场下量子点对光生载流子俘获概率的减小, 激子发光寿命的增加来自于电场下的 Stark 效应.

2. 实 验

采用分子束外延方法在 GaAs 衬底层上生长 InAs 量子点样品. 样品结构的生长次序如下: n 型掺杂 GaAs 缓冲层, 20 个周期的 n 型掺杂 GaAs/Al_{0.9}Ga_{0.1}As 分布布拉格反射镜, 在 2λ GaAs 腔波腹处的 InAs 量子点层, p 型掺杂的 GaAs 层, 其中量子点层是由 2.35 个 InAs 单层 (ML) 淀积而成, 其生长速率为 0.001 ML/s. 根据这种方法制备的 InAs 量子点有非常低的密度, 即在每平方微米以内的量子点数小于 1, 所以实验中采用共聚焦显微系统就可以分辨出单个量子点. 将样品制备成 p-i-n 二极管器件, 且中间的透光区域直径约为 44 μm.

样品置于连续液氮流致冷的低温系统, 实验过

^{*} 国家自然科学基金 (批准号: 60676054) 资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: bqsun@red.semi.ac.cn

程中保持温度为 5 K. 激发光源是半导体脉冲激光器, 波长为 639 nm, 脉冲重复频率为 20 MHz. 用掺钛蓝宝石激光器进行波长选择激发量子点样品. 激发和收集荧光是由数值孔径为 0.5 的物镜完成, 稳态光谱测量是由 0.5 m 的单色仪和 Si-CCD 完成. 单量子点寿命测量采用了时间关联单光子计数技术, 探测器为 Si 雪崩光电二极管.

3. 实验结果及分析

在温度为 5 K、激发波长为 639 nm 和激发功率为 0.5 μ W 条件下, 测量了量子点中激子的发光强度和峰值发光位置随外加偏压的变化, 结果如图 1 所示. 加在单量子点器件 p-i-n 结 p 端的电压从 1.1 V 减小到 -0.5 V, 步长为 0.2 V. 激子发光强度随着 p 端正向偏压的减小或负偏压的增加而逐渐减小, 在偏压接近 -0.5 V 时, 测量的激子发光强度基本为零(在收集光谱积分时间 1 s 内). 同时, 激子发光峰出现红移现象, 即 Stark 效应. 利用光反射调制光谱, 我们测量得到量子点样品的 Franz-Keldysh 振荡曲线, 从而计算出样品 i 区的内建电场和电势 $V_b \approx 1.414$ V, 在外加偏压 V_a 作用下, 量子点 i 区的有效电场强度为 $F = (V_b - V_a)/w$, 其中 w 为 i 区的宽度.

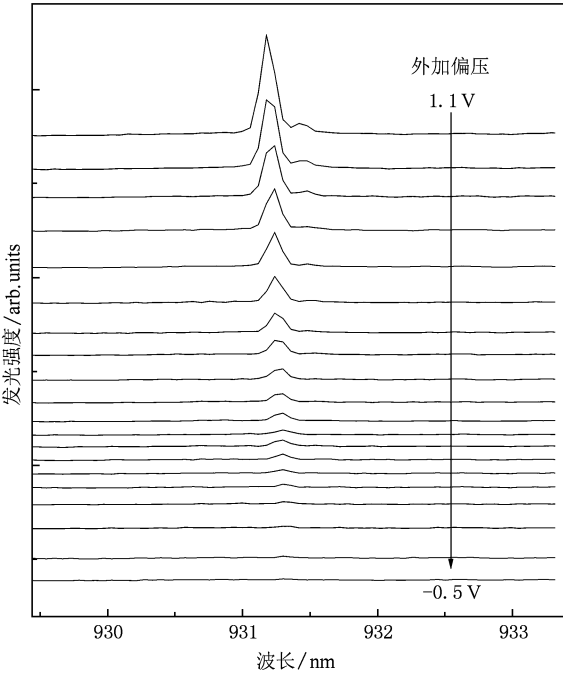


图 1 温度为 5 K 下激子发光光谱随外加偏压的变化

图 2 示出了电压调制量子点的发光特性. 如图 2(a) 所示, 电场强度从 0.5 kV/cm 增加到 3.5 kV/cm, 激子发光峰红移了 160 μ eV (从 931.19 nm 移动到 931.31 nm). 如图 2(b) 所示, 当电场强度达到 3.5 kV/cm 时, 发光强度接近零. 这些数据表明, 在较小的外加偏压调谐下能够观察到激子的 Stark 效应和激子发光强度的猝灭. 对于系综量子点, 因为量子点的尺度涨落, 发光峰的半高宽为几十毫电子伏特, 所以在较小的偏压下观测不到激子的 Stark 效应和激子发光峰的猝灭现象. 因而, 单量子点激子光谱易于电场调谐和操作. 为了研究激子复合寿命和外加偏压的关系, 利用时间关联单光子计数技术, 在温度为 5 K 和脉冲激光波长为 639 nm 下测量不同偏压(电场)下单量子点发光强度的衰变曲线. 对测量的实验曲线采用单指数函数拟合, 得到单量子点中激子的寿命与电场的关系. 如图 2(c) 所示, 随着电场强度的增加, 激子的寿命呈非线性增加. 当电场强度从 0.6 kV/cm 增加到 4.0 kV/cm 时, 激子的寿命从 0.7 ns 增加到 1.3 ns. 这个实验结果与电场导致的电子-空穴分离(即 Stark 效应)一致, 即随着电场强度的增加, 激子的复合速率在减小. 假设外加偏压不影响量子点对光生载流子的俘获概率, 则电场影响激子寿命的主要机理是电场导致的电子-空穴分离

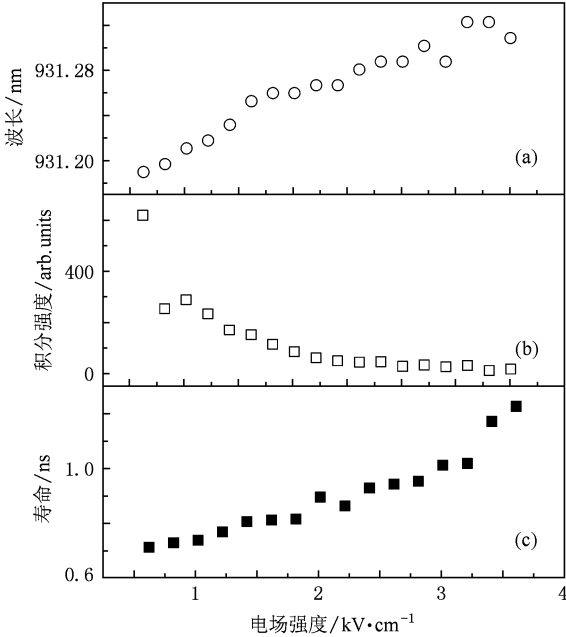


图 2 温度为 5 K 下电压调制量子点的光学特性 (a) 激子发光峰红移, (b) 激子发光强度随电场强度的变化, (c) 激子发光寿命随电场强度的变化

和电子/空穴隧穿逃离量子点. 考虑到这两种机制,有效复合的寿命 τ_{eff} 可以表示为^[17]

$$\frac{1}{\tau_{\text{eff}}} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_t}, \tag{1}$$

其中 τ_r 是激子的辐射复合寿命, τ_t 是电子/空穴的隧穿时间. 由(1)式可知,载流子的隧穿速率越大,则激子有效复合寿命越小,即随着电场强度的增加,载流子隧穿速率增加,激子的有效复合寿命减小. 这与图 2(c)的实验结果不符. 因而,电场引起的电子-空穴分离是导致激子寿命增加的主要原因. 电场导致的电子-空穴分离可以解释激子发光峰的红移和激子复合寿命的增加,但电子-空穴的分离不能说明激子发光强度的减弱.

为此,我们测量了 780,880 和 905 nm 激发波长下,激子发光峰的强度随电场的变化关系,结果如图 3 所示. 从图 3 可以看出,对于 780 和 880 nm 波长的激光激发样品情况,当偏压超过某一个值后,随着外加偏压的进一步增加其激子发光强度快速地减小,而且前者激子发光强度的减小速率大于后者. 在 780 nm 波长激光激发下,激子发光具有较小的猝灭电场. 而对于 905 nm 波长激光激发样品,其激子发光强度随外加偏压的变化关系如图 3 所示,电场强度大于 4 kV/cm 时,激子的发光强度变化不大. 电场强度在 4—9 kV/cm 范围内,780 nm 波长激光激发的量子点的发光已经猝灭,880 nm 波长激光激发的量子点的发光也接近猝灭,而 905 nm 波长激光激发的量子点的发光强度基本不变(相比前两种情况). 在这三种情况下,电场导致量子点中电子-空穴波函数分离应该是相同的. 因此,导致激子发光强度随着电场的增加而减弱直到猝灭的原因并不是来自于电场引起激子的 Stark 效应和量子点中载流子隧穿逃离量子点. 因而,激子发光强度猝灭的物理原因应与量子点对光生载流子的俘获概率有关.

下面分析在 780,880 和 905 nm 激发波长下外加电压调制单个量子点的物理过程. 对于激发波长为 905 nm 的情况,光激发的载流子在量子点内产生,并且当电场强度大于 4 kV/cm 时,尽管电场强度继续增加,但是激子发光强度基本不变. 这说明在此电场范围内,载流子并没有隧穿出量子点. 当电场强度小于 4 kV/cm 时,激子发光强度出现极小

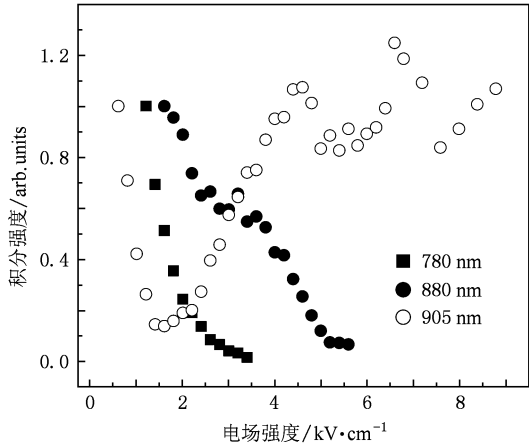


图3 温度为 5 K 下激子发光强度随电场的变化 激发波长为 780,880 和 905 nm

值,其物理机制尚不清楚. 当激发波长为 780 nm 时,载流子在 GaAs 层中产生,然后载流子弛豫被量子点俘获. 随着电场强度的增加,载流子在 p-i-n 结 i 区的漂移速率加大,光生载流子被量子点俘获的概率逐渐减小,所以我们测量的激子发光强度也在逐渐减弱. 在激发波长为 880 nm 情况下,光生载流子在浸润层中产生,然后弛豫被量子点俘获. 随着电场强度的增加,光生载流子被量子点俘获的概率在减小,而通过 GaAs 三角势垒隧穿逃逸的概率在增加. 因此,在 880 nm 波长激光激发下,当电场达到一定值时,载流子隧穿逃逸的概率大于量子点俘获的概率,使得量子点的发光强度逐渐接近于零. 在这种情况下,量子点发光猝灭的电场强度大于 780 nm 光生载流子的情况.

4. 结 论

本文研究了 InAs 单量子点发光光谱的电场调谐特性. 研究表明,外加电压可以有效地调谐 InAs 单量子点的发光性质. 随着电场强度的增加,观察到明显的 Stark 效应,并由此导致激子发光寿命的增加. 同时实验给出量子点中激子发光强度的减小及猝灭来自于不同偏压下量子点对载流子俘获概率的减小. 这些实验结果有助于在低偏压下调谐量子点光谱以及在基于单量子点的量子操作中的应用.

- [1] Awschalom D D, Loss D, Samarth N 2002 *Semiconductor Spintronics and Quantum Computing* (New York: Springer) p229
- [2] Yuan Z L, Kardynal B E, Stevenson R M, Shields A J, Lobo C C K, Beattie N S, Ritchie D A, Michael P 2002 *Science* **295** 102
- [3] Gu B J, Xu W B, Ye B 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 689 (in Chinese) [顾斌杰、须文波、叶 宾 2008 物理学报 **57** 689]
- [4] Yin J W, Xiao J L, Yu Y F, Wang Z W 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 689 (in Chinese) [尹辑文、肖景林、于毅夫、王子武 2008 物理学报 **57** 2695]
- [5] Gammon D, Snow E S, Shanabrook B V, Katzer D S, Park D 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 3005
- [6] Hameau S, Guldner Y, Verzelen O, Ferreira R, Bastard G, Zeman J, Lemaître A, Gérard J M 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 4152
- [7] Lundstrom T, Schoenfeld W, Lee H, Petroff P M 1999 *Science* **286** 2312
- [8] Drexler H, Leonard D, Hansen W, Kotthaus J P, Petroff P M 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 2252
- [9] Warburton R J, Schäfflein C, Haft D, Bickel F, Lorke A, Karrai K, Garcia J M, Schoenfeld W, Petroff P M 2000 *Nature* **405** 926
- [10] Ediger M, Dalgarno P A, Smith J M, Gerardot B D, Warburton R J, Karrai K, Petroff P M 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 211909
- [11] Finley J J, Sabathil M, Vogl P, Abstreiter G, Oulton R, Tartakovskii A I, Mowbray D J, Skolnick M S 2004 *Phys. Rev. B* **70** 201308
- [12] Schmidt K H, Medeiros-Ribeiro G, Petroff P M 1998 *Phys. Rev. B* **58** 3597
- [13] Findeis F, Baier M, Beham E, Zrenner A, Abstreiter G 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 2958
- [14] Haft D, Warburton R J, Karrai K, Huan S, Medeiros-Ribeiro G, Garcia J M, Schoenfeld W, Petroff P M 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 2946
- [15] Bennett A J, Unitt D C, See P, Shields A J, Atkinson P, Cooper K, Ritchie D A 2005 *Phys. Rev. B* **72** 033316
- [16] Miyazawa T, Nakaoka T, Usuki T, Tatebayashi J, Arakawa Y, Hirose S, Takemoto K, Takatsu M, Yokoyama N 2008 *J. Appl. Phys.* **104** 013504
- [17] Bosch J, Alén B, Martínez-Pastor J, Granados D, García J M, González L 2008 *Superlat. Microstruct.* **43** 582

Tuning photoluminescence of single InAs quantum dot by electric field^{*}

Chang Xiu-Ying Dou Xiu-Ming Sun Bao-Quan[†] Xiong Yong-Hua Ni Hai-Qiao Niu Zhi-Chuan

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

(Received 10 July 2009; revised manuscript received 22 December 2009)

Abstract

By using photoluminescence (PL) and time-resolved PL spectra, the optical properties of single InAs quantum dot (QD) embedded in the p-i-n structure have been studied under an applied electric field. With the increasing of electric field, the exciton lifetime increases due to the Stark effect. We noticed that the decrease or quenching of PL intensity with increasing the electric field is mainly due to the decrease of the carriers captured by QD.

Keywords: single InAs quantum dot, Stark effect, electron-hole separation

PACC: 7855, 7847, 7845

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60676054).

[†] Corresponding author. E-mail: bqsun@red.semi.ac.cn