

# 静水压力调谐 Ag 纳米颗粒散射场下 量子点激子寿命\*

黄君辉<sup>1)2)</sup> 李元和<sup>1)2)</sup> 王健<sup>1)2)</sup> 李叔伦<sup>1)2)</sup> 倪海桥<sup>1)2)</sup>  
牛智川<sup>1)2)</sup> 窦秀明<sup>1)2)†</sup> 孙宝权<sup>1)2)‡</sup>

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)

(2022 年 7 月 6 日收到; 2022 年 8 月 7 日收到修改稿)

将 InAs/GaAs 量子点薄膜样品转移到 Ag 纳米颗粒覆盖的 Si 衬底上, 然后将样品放到金刚石对顶砧压力腔室内. 在 1.09—1.98 GPa 的压力范围内, 测量了量子点激子的荧光光谱和时间分辨光谱. 实验结果显示, 随着静水压力的增大, 激子的发光波长蓝移, 激子的发光寿命从  $(41 \pm 3) \times 10$  ns 延长到  $(120 \pm 4) \times 10$  ns, 再减短到  $(7.6 \pm 0.2)$  ns, 在激子发光波长为 797.49 nm 时, 寿命达到最长的  $(120 \pm 4) \times 10$  ns. 相比没有 Ag 纳米颗粒影响的 InAs/GaAs 量子点中的激子寿命约 1 ns, 激子的寿命延长了约 1200 倍. 其物理机制为量子点浸润层中激子的辐射场和 Ag 纳米颗粒的散射场之间发生相消干涉, 抑制了浸润层中激子的自发辐射, 这些长寿命的浸润层激子将扩散到量子点中, 并辐射复合发光, 从而观察到量子点激子的长寿命衰变曲线. 这一实验结果与基于在散射场下的偶极子辐射模型计算结果一致.

**关键词:** InAs/GaAs 量子点, 自发辐射速率, Ag 纳米颗粒, 长寿命激子, 静水压力

**PACS:** 73.21.La, 73.20.Mf, 78.67.Bf, 07.35.+k

**DOI:** 10.7498/aps.71.20221344

## 1 引言

当发光偶极子靠近可反射光场的光滑平面或界面时, 偶极子的辐射场将受到表面反射光场的调制. 当偶极子的辐射场与表面反射场相位相同时, 偶极子的自发辐射会明显增强; 相反, 如果偶极子辐射场与表面反射场相位相反时, 其自发辐射会受到抑制. 早在 1970 年 Drexhage<sup>[1]</sup> 报道了该实验现象, 最近在单层二维材料中也观察到类似的增强或抑制激子偶极辐射现象<sup>[2,3]</sup>. 对应的物理机制可以理解为激子偶极子与其镜像偶极子的耦合导致形成了对称态 (辐射态) 和反对称态 (非辐射态)<sup>[4–9]</sup>.

这种激子辐射速率的增强或抑制现象, 即激子的发光寿命的缩短或延长, 在激子偶极子与金属纳米颗粒耦合的情况下也有报道<sup>[10–15]</sup>. 然而, 激子偶极子与金属纳米颗粒耦合的研究主要集中在近场耦合条件下如何增强激子的自发辐射<sup>[16–21]</sup>, 而有关金属纳米颗粒的等离子场导致激子发光的抑制现象报道的很少<sup>[22–27]</sup>. 激子辐射速率的抑制, 也即激子发光寿命的延长, 可以在量子信息处理<sup>[28]</sup>、光电子器件应用<sup>[29,30]</sup> 和基础物理研究如玻色-爱因斯坦凝聚<sup>[31]</sup> 等方面的研究中得到应用. 为了观察到最佳的长寿命激子态, 激子偶极子与金属纳米颗粒之间的间隔距离  $z$  要满足  $kz \sim 1$  的相位条件<sup>[22]</sup>, 而不是近场条件  $kz \ll 1$ <sup>[32]</sup>, 这里  $k = 2\pi n/\lambda$  为光的波数,

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

† 通信作者. E-mail: xmdou@semi.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: bqsun@semi.ac.cn

$n$  为介质的折射率,  $\lambda$  为真空中波长. 众所周知, 静水压力可以用来调谐半导体中激子的发光波长 [33], 因此, 在静水压力实验中, 通过连续调谐激子的发光波长, 可以实现抑制激子自发辐射的相位条件  $kz \sim 1$ .

本文将 InAs/GaAs 量子点 (QD) 薄膜样品转移到覆盖了 Ag 纳米颗粒的 Si 衬底上, 通过施加静水压力改变激子的发光波长, 测量量子点中激子的光致荧光光谱 (PL) 和时间分辨光致荧光光谱 (TRPL), 得到了激子寿命与发光波长的依赖关系. 实验结果显示, 当激子的发光波长为 797.49 nm 时, 激子的寿命达到最大值  $(120 \pm 4) \times 10$  ns; 相比没有 Ag 纳米颗粒影响的量子点中的激子寿命 (约 1 ns), 激子的寿命延长了约 1200 倍. 其物理机制为量子点浸润层 (WL) 中的激子辐射场和 Ag 纳米颗粒的散射场之间产生相消干涉 [22,34], 抑制了浸润层中激子的自发辐射. 浸润层中自发辐射被抑制的激子具有长的发光寿命, 长寿命激子将扩散并被附近的量子点俘获而发光. 从而, 测量量子点中激子的发光寿命就反映量子点浸润层中的激子受 Ag 纳米颗粒散射场的影响 [23].

## 2 研究方法

本文研究的 InAs/GaAs 量子点样品由分子束外延 (MBE) 方法在 (001) 晶向的半绝缘 GaAs 衬底上生长 [35]. InAs/GaAs 量子点的结构包括:

300 nm 的 GaAs 缓冲层, 100 nm 的 AlAs 牺牲层, 19 nm 的 GaAs 间隔层, InAs 量子点层以及 100 nm 的 GaAs 盖层. 在生长约一个单层的 InAs 浸润层后, 继续沉积 InAs 将会形成岛状的 InAs 量子点 [36]. 使用 8% 浓度的氢氟酸腐蚀掉外延样品的 AlAs 牺牲层后, 将上层中含有量子点的薄膜转移到覆盖了半径约 20 nm 的 Ag 纳米颗粒的 Si 片上, Si 片的厚度为 50  $\mu$ m, 转移后样品的示意图如图 1(a) 所示.

在静水压力实验中, 将样品和用于标定压力的红宝石颗粒一同放入金刚石对顶砧 (DAC) 的腔室中. 在腔内充入作为传压介质的液态氩后, 用螺丝拧紧压头锁定初始压力 (具体压力值由随后测量红宝石发光峰值位置来计算). 腔室由孔洞直径为 0.25 mm, 厚度为 0.4 mm 的 T304 钢片和上下两个金刚石砧面构成, 示意图如图 1(b) 所示. 在 20 K 的低温环境下, 通过与 DAC 对接的电驱动压电陶瓷 (PZT) 连续增加腔室内样品的压力 [37,38]. 在不同的压力下, 采用波长为 405 nm, 脉冲宽度为 40 ps 的半导体可调谐激光器激发样品, 测量样品的 PL 光谱和 TRPL 光谱. 激光经由显微物镜 (数值孔径为 0.45) 聚焦到样品上, 量子点样品的荧光信号由同一显微物镜收集后输入到 500 mm 的光栅光谱仪中, 由电荷耦合器件 (CCD) 测量样品的 PL 光谱. 采用时间分辨率为 280 ps 的时间关联单光子计数设备 (TCSPC) 测量样品的 TRPL 光谱.

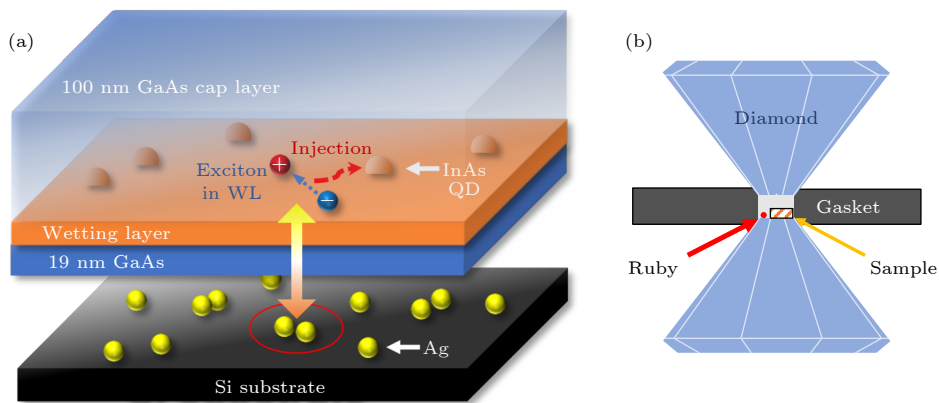


图 1 (a) InAs/GaAs 量子点样品转移到覆盖了 Ag 纳米颗粒的 Si 片上示意图, 其中黄色箭头表示量子点浸润层中激子偶极子与金属纳米颗粒偶极子之间的相互作用; (b) 金刚石对顶砧设备示意图, 其中金属垫片和金刚石砧面组成样品的压力腔室, 腔室中放置样品和红宝石

Fig. 1. (a) Schematic diagram of the InAs/GaAs QD sample transferred onto a Si substrate covered with Ag nanoparticles. The yellow arrow represents the interaction between exciton dipole in WL and the Ag nanoparticles. (b) Schematic diagram of the diamond anvil cell. The pressure chamber consists of a metal gasket and diamond surfaces. The sample and ruby are placed in the chamber.

### 3 结果与讨论

在低温 20 K 和常压条件下, 量子点样品的 PL 光谱如图 2(a) 所示. PL 光谱包括中心波长为 878.45 nm 的浸润层发光峰, 以及处于浸润层发光能量低能端的量子点发光峰锐线, 可以看到浸润层的发光峰值强度大于量子点发光峰值的强度. 二维 InAs 浸润层厚度约为 0.9 nm, 远小于激子玻尔半径, 存在强烈的量子限制势能, 而直径约 20 nm 且高度约 7 nm 的岛状的 InAs 量子点, 其能级受到相对较小的量子限制作用, 因此量子点波长将长于浸润层波长<sup>[39]</sup>. 图 2(a) 的插图为测量的量子点 TRPL 光谱, 对应的发光峰波长为 893.78 nm (PL 光谱中用红色圆圈标记的发光峰). 可以看出, 其发光强度随时间的函数关系可用单指数函数拟合, 由此得到典型的量子点的发光寿命值  $(0.84 \pm 0.01)$  ns (红色实线为用单指数拟合的结果). 当量子点样品转移到覆盖了 Ag 纳米颗粒的 Si 片上, 并放入 DAC 样品腔内后, 在温度为 20 K 和压力为 1.09 GPa 的条件下 (红宝石定标压力), 测量的量子点样品 PL 光谱见图 2(b). 可以观察到浸润层发光峰 (808.5 nm) 和几个分立的量子点发光谱线, 并显示压力导致的发光峰的蓝移现象<sup>[37]</sup>, 产生该蓝移现象的原因是各向同性的流体静水压力压缩了量子点的晶格常

数, 导致量子点的导带  $\Gamma$  谷向高能端移动<sup>[40]</sup>. 同时, 对于转移后的量子点样品, 相比于浸润层发光峰值强度, 量子点发光峰谱线明显增强, 如发光峰为 825.2 nm 的量子点发光峰; 图 2(b) 中的插图给出量子点发光峰 (825.2 nm) 的 TRPL 光谱, 显示发光具有非常长的寿命. 此外可发现荧光衰减曲线不符合单指数衰减规律, 可以用类拓展指数衰减函数  $I(t) = At^{\beta-1}e^{-(rt)^{\beta}}$  来拟合<sup>[23]</sup>, 其中  $A$  表示计数强度,  $\beta$  和  $r$  为拟合参数, 由此计算发光谱线的平均寿命  $\tau = \frac{1}{r}\Gamma\left(\frac{1}{\beta} + 1\right)$ , 其中  $\Gamma$  为伽马函数. 图 2(b) 插图中红色实线为类拓展指数衰减函数的拟合结果, 拟合得到量子点发光谱线的平均寿命为  $(41 \pm 3) \times 10$  ns.

在低温和常压的条件下, 本课题组<sup>[22]</sup> 已详细地开展了 InAs/GaAs 量子点样品中观察到长寿命量子点发光的实验测量和理论分析. 当量子点浸润层中激子偶极子与金属纳米颗粒偶极子满足  $kz \sim 1$  的相位条件时, 偶极子间的辐射场将发生明显的干涉相消现象, 并将抑制浸润层中激子偶极子的自发辐射. 浸润层中的长寿命激子 ( $\tau \gg 1$  ns) 将通过扩散被附近的量子点俘获并在量子点中辐射复合, 对应的自发辐射寿命约 1 ns<sup>[41,42]</sup>. 因此, 当浸润层中存在长寿命激子的条件下, 通过测量量子点的激子发光动力学, 可以间接地测量浸润层中长寿命激子的发光寿命.

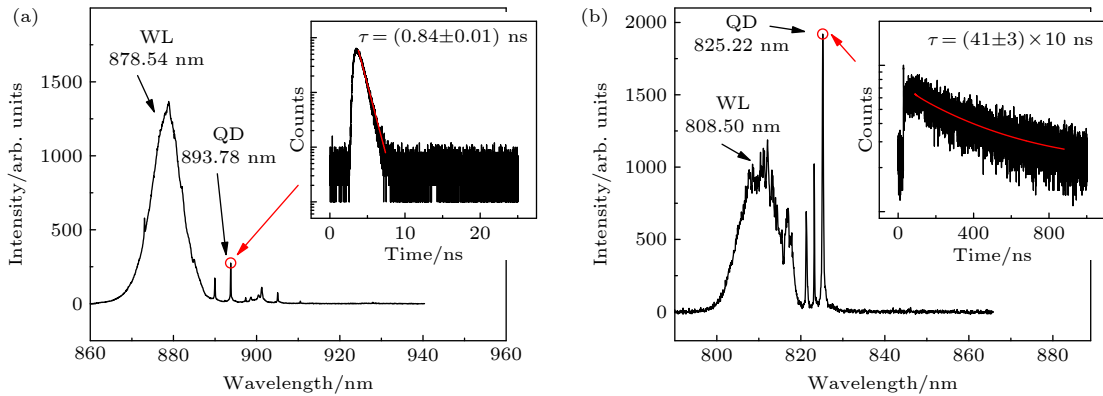


图 2 (a) 低温 20 K 和常压下量子点样品的 PL 光谱, 激发功率为  $2.2 \mu\text{W}$ ; 插图为 893.78 nm 波长的量子点发光谱线的 TRPL 光谱, 激光为 40 MHz 的脉冲光, 激发功率为  $1.04 \mu\text{W}$ , 红色实线为使用单指数衰减函数拟合的结果; (b) 在低温 20 K 和 1.09 GPa 压力下, 转移后量子点样品的 PL 光谱, 激发功率为  $2.2 \mu\text{W}$ ; 插图为 825.22 nm 波长的发光谱线的 TRPL 光谱, 激发模式为 1 MHz 频率的脉冲光, 激发功率为  $0.026 \mu\text{W}$ , 红色实线为类拓展指数衰减函数拟合结果

Fig. 2. (a) PL spectrum of QD sample at 20 K and atmospheric pressure, excited by a power of  $2.2 \mu\text{W}$ . Inset: TRPL spectrum of QD emission line of 893.78 nm at an excitation power of  $1.04 \mu\text{W}$  in pulsed mode of 40 MHz. The red solid line represents the single exponential function fitting result. (b) PL spectrum of the transferred QD sample at 20 K and 1.09 GPa, excited by a power of  $2.2 \mu\text{W}$ . Inset: TRPL spectrum of QD emission line of 825.22 nm at an excitation power of  $0.026 \mu\text{W}$  in pulsed mode of 1 MHz. The red solid line represents the stretched-like exponential function fitting result.

静水压力可以改变材料的发光波长, 而不同的发光波长下, 金属颗粒偶极子与激子偶极子间的相位差是不同的, 也即偶极子间辐射场的干涉程度是不同的. 同时, 实验报道, 在静水压力小于约 7 GPa 的条件下, 外延生长的 InAs/GaAs 量子点激子的自发辐射寿命基本不变<sup>[43]</sup>. 因此, 可以通过测量含有 Ag 纳米颗粒的 InAs/GaAs 量子点样品的 TRPL 光谱, 研究不同静水压力下浸润层激子寿命的变化, 从而研究不同相位差下的偶极子间辐射场的干涉相消现象.

图 3(a) 为 PZT 在外加电压后, DAC 样品腔的静水压力从 1.09 GPa 增大到 1.98 GPa 关系曲线. 在这一压力范围内, 浸润层 (较宽的发光峰) 和量子点 (分立的发光谱线) 的 PL 光谱如图 3(b) 所示, 随着压力的增大, 浸润层和量子点的发光峰出现蓝移的现象<sup>[44]</sup>, 图中蓝色和红色虚线分别表示在不同的压力下, 低温跟踪测量浸润层和量子点 PL 谱线的蓝移结果. 图 3(c) 显示浸润层和量子点

发光峰波长与压力的函数关系.

为了研究转移后的量子点样品中浸润层激子自发辐射寿命随发光波长 (压力导致发光波长蓝移) 的变化, 本工作跟踪测得了量子点发光峰在不同静水压力下的 TRPL 光谱. 图 4(a) 总结了归一化的量子点辐射复合速率  $\gamma/\gamma_0$  随着浸润层发光波长变化的实验结果, 其中  $\gamma = 1/\tau$  为实验测量值,  $\gamma_0 \sim 1 \text{ ns}^{-1}$ . 图 4(a) 是基于图 3(c) 中量子点浸润层和量子点发光波长与压力的函数关系, 得到图 4(a) 量子点辐射复合速率  $\gamma/\gamma_0$  随着浸润层发光波长变化的函数关系. 图 4(a) 中圈出的 3 个压力值  $A(P = 1.09 \text{ GPa})$ ,  $B(P = 1.38 \text{ GPa})$ ,  $C(P = 1.98 \text{ GPa})$ , 对应浸润层发光峰波长分别为 808.50, 797.49 nm 和 769.84 nm, 相应的量子点 PL 光谱和发光寿命如图 4(b)–(d) 所示. 插图为相应的量子点发光谱线的 TRPL 光谱, 其中红色实线为类拓展指数拟合的结果, 拟合得到量子点的发光寿命分别为  $(41 \pm 3) \times 10 \text{ ns}$ ,  $(120 \pm 4) \times 10 \text{ ns}$  和  $(7.6 \pm 0.2) \text{ ns}$ .

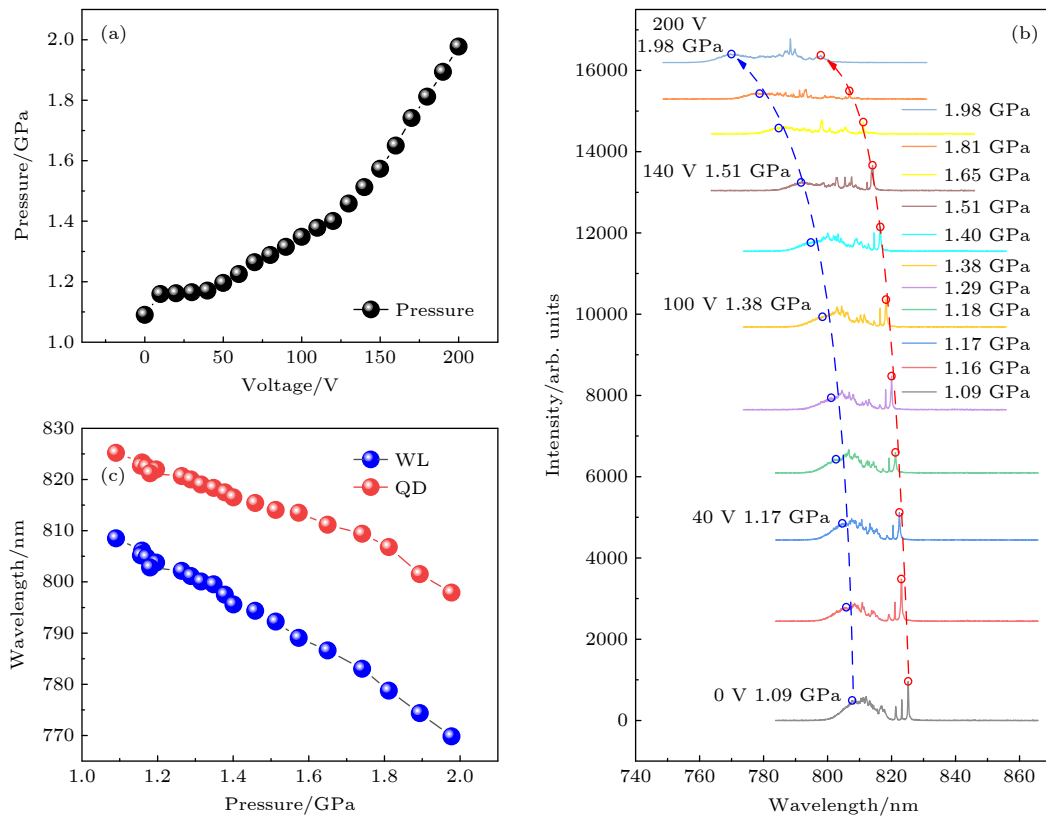


图 3 (a) DAC 腔中的压力与 PZT 电压的函数关系; (b) 不同压力下 InAs/GaAs 量子点样品的 PL 光谱, 激发功率为  $2.2 \mu\text{W}$ , 红色和蓝色虚线箭头分别表示量子点和浸润层发光峰波长蓝移结果; (c) 量子点 (红色) 和浸润层 (蓝色) 发光峰波长与压力的函数关系  
Fig. 3. (a) Hydrostatic pressure in DAC chamber as a function of applied voltage of PZT; (b) PL spectra of the InAs/GaAs QD sample measured under different pressures at an excitation power of  $2.2 \mu\text{W}$ , the red and blue dashed lines indicate the pressure-induced blue shift of QD and WL emission peaks, respectively; (c) pressure dependences of QD (red) and WL (blue) PL peak wavelengths.

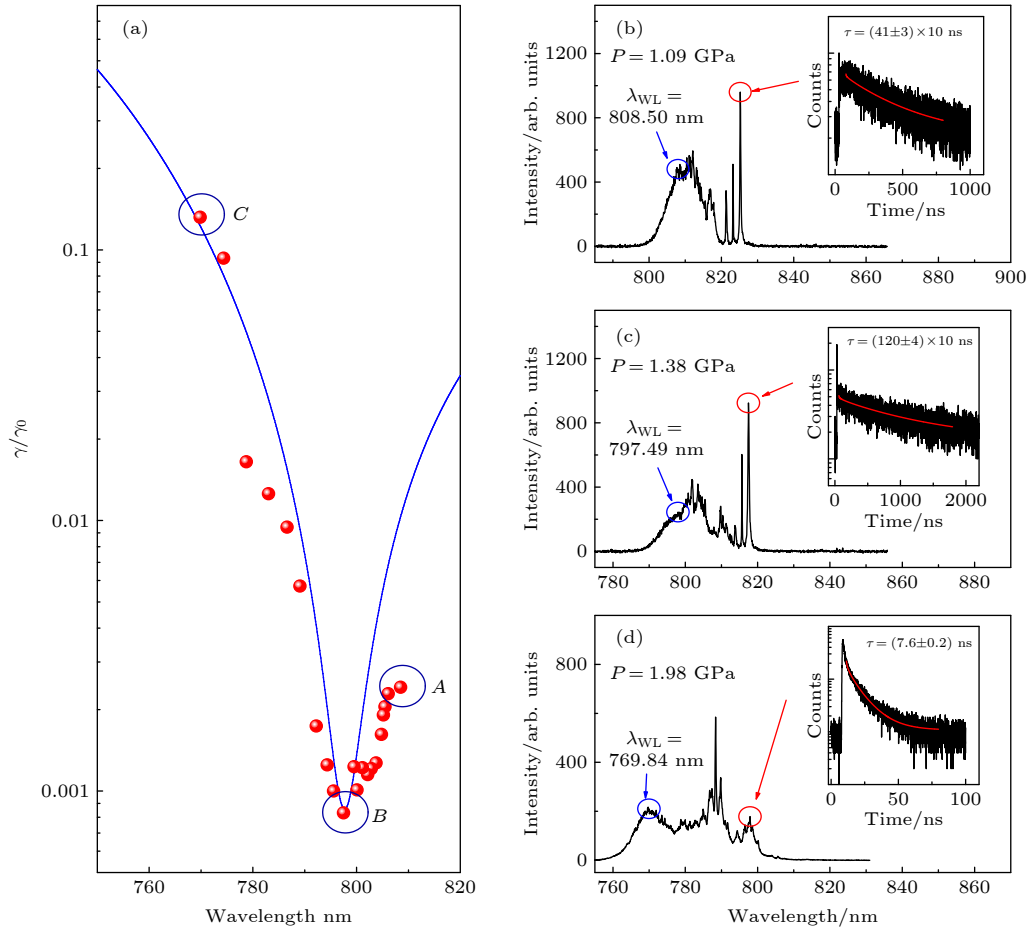


图 4 (a) InAs/GaAs 量子点样品中量子点辐射速率与浸润层发光波长的依赖关系, 其中红色点为不同压力下的实验数据, 蓝色实线为 (1) 式计算结果; (b)–(d) 在图 (a) 中蓝色圆圈 A, B 和 C 三个浸润层发光波长 (808.50 nm, 797.49 nm 和 769.84 nm) 位置对应的量子点 PL 和 TRPL 光谱 (插图), 对应激发光的脉冲频率分别为 1 MHz, 0.25 MHz 和 10 MHz, 其中插图内红色实线表示类拓展指数函数拟合结果

Fig. 4. (a) Dependence of QD radiation rate and WL emission wavelength for the transferred InAs/GaAs QD sample, the red dots are experimental data under different hydrostatic pressures and the blue solid line represents the calculated result based on Eq. (1); (b)–(d) PL and TRPL spectra (Inset) of QD for the experimental condition of WL wavelengths at 808.50, 797.49 and 769.84 nm, respectively, corresponding to the data points A, B and C in Fig. 4(a), with a laser excitation repetition rate of 1 MHz, 0.25 MHz, and 10 MHz respectively. The red solid lines in inset represent the stretched-like exponential function fitting results.

在此, 通过间接测量 InAs/GaAs 量子点发光峰的 TRPL 光谱, 得到量子点浸润层激子寿命与波长的函数关系.

为理解图 4(a) 的实验结果, 考虑在金属纳米颗粒散射场的影响下, 浸润层中激子的自发辐射过程. 这里引用之前推导的归一化的二维激子自发辐射速率表达式 [22]:

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = 1 + \frac{3k^3 N}{8\pi} \text{Im} \left\{ \alpha(\lambda) \left[ \frac{1}{(kz)^2} + \frac{2i}{(kz)^3} - \frac{3}{(kz)^4} - \frac{2i}{(kz)^5} + \frac{1}{(kz)^6} \right] e^{i2kz} \right\}, \quad (1)$$

式中  $k = 2\pi n/\lambda$  为介质中的波数,  $\lambda$  为真空中的波

长,  $n$  为介质折射率,  $N$  为散射光场的平均金属纳米颗粒数;  $z = D + R$  为激子偶极子到金属纳米颗粒中心的距离,  $D$  是间隔层 GaAs 的厚度,  $R$  是金属纳米颗粒半径;  $\alpha(\lambda)$  为金属纳米颗粒的极化率 [45],

$$\alpha(\lambda) = \frac{\alpha_0(\lambda)}{1 - \frac{ik^3 \alpha_0(\lambda)}{6\pi}},$$

$$\alpha_0(\lambda) = 4\pi R^3 \frac{\varepsilon(\lambda) - \varepsilon_m(\lambda)}{\varepsilon(\lambda) + 2\varepsilon_m(\lambda)}, \quad (2)$$

其中,  $\alpha_0(\lambda)$  为准静态极化率,  $\varepsilon(\lambda)$  和  $\varepsilon_m(\lambda)$  为金属纳米颗粒和 GaAs 介质的介电常数. 根据 (1) 式, 如果右侧第 2 项的值为负数, 则激子自发辐射速率比值  $\gamma/\gamma_0$  在一定的  $N$  值条件下可以接近于 0, 即

激子的寿命趋于无穷大. 物理上, (1) 式右侧第 2 项的值为负数意味着金属纳米颗粒的散射场的相位相对激子偶极子的自发辐射场相位差处在  $(\pi, 2\pi)$  区间内, 两者之间发生干涉相消现象, 从而使浸润层中形成了长寿命的激子态. 长寿命的激子经扩散并被附近的量子点俘获而发光, 得到实验中测量的长寿命量子点谱线 TRPL 光谱.

激子偶极子辐射场和金属纳米颗粒散射场之间的相位条件与激子辐射场的波长密切相关 ( $kz \sim 1, k = 2\pi n/\lambda$ ), 此外, 金属颗粒极化率  $\alpha$  与金属和 GaAs 的介电常数有关, 而介电常数也是波长的函数. 因此, 通过压力改变激子的发光波长来调谐激子偶极子场和金属颗粒散射场之间相位条件, 可以达到调谐二维激子的自发辐射寿命的目的. 采用插值法得到 GaAs 介质和 Ag 金属颗粒对应不同波长 (压力下) 的介电常数<sup>[46–48]</sup>, 同时取 GaAs 间隔层厚度  $D$  的实验值 19 nm, 当 Ag 纳米颗粒平均值  $N = 1.6394$ , 颗粒半径  $R$  为 18.75 nm 时, (1) 式预测的辐射速率变化趋势如图 4(a) 的蓝色实线曲线所示. 考虑到 Ag 纳米颗粒半径分布的不均匀性, 以及压力下金属颗粒半径的减小<sup>[49]</sup>, 在模拟计算中, 取  $R = 18.75$  nm 是合理的. 可以看出, (1) 式预测的辐射速率变化趋势很好地描述激子自发辐射速率随激子发光波长的规律. 实验数据和 (1) 式的计算曲线得到: 当激子发光波长为 797.49 nm 时, 量子点发光寿命达到最大值约为  $(120 \pm 4) \times 10$  ns. 因此, 实验数据和模拟计算显示浸润层中二维激子的寿命与金属纳米颗粒的散射场相位高度相关, 通过改变激子偶极子发光波长可以调谐激子的自发辐射寿命.

## 4 结 论

将 InAs/GaAs 量子点薄膜样品转移到覆盖了 Ag 纳米颗粒的 Si 衬底上, 并放入 DAC 压力腔中. 通过静水压力调谐量子点样品激子发光波长, 测量量子点样品在不同压力下的 PL 和 TRPL 光谱. 实验测得量子点激子辐射速率随着波长有明显的变化, 辐射速率先减小后增大, 当波长  $\lambda = 797.49$  nm 时, 激子寿命达到最大值  $(120 \pm 4) \times 10$  ns, 相比没有 Ag 纳米颗粒影响的量子点中的激子寿命约 1 ns, 激子的寿命延长了约 1200 倍. 这个实验结果可以基于量子点激子辐射场与金属纳米颗粒

散射场之间的相消干涉来理解. 针对 InAs/GaAs 量子点样品浸润层激子亚稳态寿命值的波长依赖关系的研究, 有助于深入理解该长寿命亚稳态产生的物理机制, 并进一步探究其潜在应用.

## 参考文献

- [1] Drexhage K H 1970 *J. Lumin.* **1–2** 693
- [2] Ferioli G, Glicenstein A, Henriot L, Ferrier-Barbut I, Browaeys A 2021 *Phys. Rev. X* **11** 021031
- [3] Cipris A, Moreira N A, do Espirito Santo T S, Weiss P, Villas-Boas C J, Kaiser R, Guerin W, Bachelard R 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 103604
- [4] Pineiro Orioli A, Rey A M 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 223601
- [5] Heyde K, Sau J 1986 *Phys. Rev. C Nucl. Phys.* **33** 1050
- [6] Zhou Y, Seuri 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
- [7] Ropp C, Cummins Z, Nah S, Fourkas J T, Shapiro B, Waks E 2015 *Nat. Commun.* **6** 6558
- [8] Bužek V 1990 *Z. Phys. D At. Mol. Clust.* **17** 91
- [9] Gu Y, Wang L, Ren P, Zhang J, Zhang T, Martin O J, Gong Q 2012 *Nano Lett.* **12** 2488
- [10] Anger P, Bharadwaj P, Novotny L 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 113002
- [11] Delga A, Feist J, Bravo-Abad J, Garcia-Vidal F J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 253601
- [12] Gazzano O, Michaelis de Vasconcellos S, Gauthron K, Symonds C, Bloch J, Voisin P, Bellessa J, Lemaitre A, Senellart P 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 247402
- [13] Evangelou S, Yannopapas V, Paspalakis E 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023819
- [14] Felici M, Pettinari G, Biccari F, Boschetti A, Younis S, Birindelli S, Gurioli M, Vinattieri A, Gerardino A, Businaro L, Hopkinson M, Rubini S, Capizzi M, Polimeni A 2020 *Phys. Rev. B* **101** 205403
- [15] Yan X H, Niu Y J, Xu H X, Wei H 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 067301 (in Chinese) [闫晓宏, 牛亦杰, 徐红星, 魏红 2022 物理学报 **71** 067301]
- [16] Kuhn S, Hakanson U, Rogobete L, Sandoghdar V 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 017402
- [17] Pustovit V N, Shahbazyan T V 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 077401
- [18] Huang J, Ojambati O S, Chikkaraddy R, Sokolowski K, Wan Q, Durkan C, Scherman O A, Baumberg J J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 047402
- [19] Belacel C, Habert B, Bigourdan F, Marquier F, Hugonin J P, de Vasconcellos S M, Lafosse X, Coolen L, Schwob C, Javaux C, Dubertret B, Greffet J J, Senellart P, Maitre A 2013 *Nano Lett.* **13** 1516
- [20] Dey S, Zhou Y, Tian X, Jenkins J A, Chen O, Zou S, Zhao J 2015 *Nanoscale* **7** 6851
- [21] Zhang L, Wang H Y, Wang N, Tao C, Zhai X L, Ma P Z, Zhong Y, Liu H T 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 118101 (in Chinese) [张炼, 王化雨, 王宁, 陶灿, 翟学琳, 马平准, 钟莹, 刘海涛 2022 物理学报 **71** 118101]
- [22] Chen H, Huang J, He X, Ding K, Ni H, Niu Z, Jiang D, Dou X, Sun B 2020 *ACS Photon.* **7** 3228
- [23] Huang J, Chen H, Zhuo Z, Wang J, Li S, Ding K, Ni H, Niu Z, Jiang D, Dou X, Sun B 2021 *Chin. Phys. B* **30** 097805

- [24] 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
- [25] Carreño F, Antón M A, Arrieta-Yáñez F 2013 *Phys. Rev. B* **88** 195303
- [26] Feldman M A, Dumitrescu E F, Bridges D, Chisholm M F, Davidson R B, Evans P G, Hachtel J A, Hu A, Pooser R C, Haglund R F, Lawrie B J 2018 *Phys. Rev. B* **97** 081404
- [27] Carreño F, Yannopapas V, Antón M A, Paspalakis E 2019 *Phys. Rev. A* **100** 023802
- [28] Hofmann M S, Gluckert J T, Noe J, Bourjau C, Dehmel R, Hogele A 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 502
- [29] Johansen J, Julsgaard B, Stobbe S, Hvam J M, Lodahl P 2010 *Phys. Rev. B* **81** 081304
- [30] Palumbo M, Bernardi M, Grossman J C 2015 *Nano Lett.* **15** 2794
- [31] Butov L V, Lai C W, Ivanov A L, Gossard A C, Chemla D S 2002 *Nature* **417** 47
- [32] Novotny L, Hecht B 2012 *Principles of Nano-Optics* (Cambridge: Cambridge University Press) pp335–359
- [33] Wu X F, Wei H, Dou X M, Ding K, Yu Y, Ni H Q, Niu Z C, Ji Y, Li S S, Jiang D S, Guo G C, He L X, Sun B Q 2014 *Europhys. Lett.* **107** 27008
- [34] Li Y H, Zhuo Z Y, Wang J, Huang J H, Li S L, Ni H Q, Niu Z C, Dou X M, Sun B Q 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 067804 (in Chinese) [李元和, 卓志瑶, 王健, 黄君辉, 李叔伦, 倪海桥, 牛智川, 窦秀明, 孙宝权 2022 物理学报 **71** 067804]
- [35] 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
- [36] Shang X J, Ma B, Chen Z S, Yu Y, Zha G W, Ni H Q, Niu Z C 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 227801 (in Chinese) [尚向军, 马奔, 陈泽升, 喻颖, 查国伟, 倪海桥, 牛智川 2018 物理学报 **67** 227801]
- [37] Wu X, Dou X, Ding K, Zhou P, Ni H, Niu Z, Jiang D, Sun B 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 252108
- [38] Ding K, Wu X F, Dou X M, Sun B Q 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 037701 (in Chinese) [丁琨, 武雪飞, 窦秀明, 孙宝权 2016 物理学报 **65** 037701]
- [39] Xu Z C, Jia G Z, Sun L, Yao J H, Xu J J, Hvam J M, Wang Z G 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 5367 (in Chinese) [徐章程, 贾国治, 孙亮, 姚江宏, 许京军, Hvam J M, 王占国 2005 物理学报 **54** 5367]
- [40] Itskevich I E, Lyapin S G, Troyan I A, Klipstein P C, Eaves L, Main P C, Henini M 1998 *Phys. Rev. B* **58** R4250
- [41] Wang G, Fafard S, Leonard D, Bowers J E, Merz J L, Petroff P M 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 2815
- [42] Seufert J, Bacher G, Schömig H, Forchel A, Hansen L, Schmidt G, Molenkamp L W 2004 *Phys. Rev. B* **69** 035311
- [43] Zhou P Y, Dou X M, Wu X F, Ding K, Luo S, Yang T, Zhu H J, Jiang D S, Sun B Q 2014 *J. Appl. Phys.* **116** 023510
- [44] Eisaman M D, Fan J, Migdall A, Polyakov S V 2011 *Rev. Sci. Instrum.* **82** 071101
- [45] Weber W H, Ford G W 2004 *Phys. Rev. B* **70** 125429
- [46] Johnson P B, Christy R W 1972 *Phys. Rev. B* **6** 4370
- [47] Adachi S 2012 *Handbook on Optical Constants of Metals* (Singapore: World Scientific Publishing ) pp61–68
- [48] Adachi S 2012 *The Handbook on Optical Constants of Semiconductors* (Singapore: World Scientific Publishing) pp153–162
- [49] Saglimbeni F, Bianchi S, Gibson G, Bowman R, Padgett M, Di Leonardo R 2016 *Opt. Express* **24** 27009

# Exciton lifetime of quantum dots under hydrostatic pressure tuned scattering field Ag nanoparticles\*

Huang Jun-Hui<sup>1)2)</sup> Li Yuan-He<sup>1)2)</sup> Wang Jian<sup>1)2)</sup> Li Shu-Lun<sup>1)2)</sup>  
 Ni Hai-Qiao<sup>1)2)</sup> Niu Zhi-Chuan<sup>1)2)</sup> Dou Xiu-Ming<sup>1)2)†</sup> Sun Bao-Quan<sup>1)2)‡</sup>

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*)

( Received 6 July 2022; revised manuscript received 7 August 2022 )

## Abstract

In the past few decades, the studies of exciton emissions coupled with the metal nanoparticles have mainly focused on the enhancing exciton radiation and reducing exciton lifetime by near-field coupling interactions between excitons and metal nanoparticles. Only in recent years has the plasmon-field-induced to extend exciton lifetime (inhibition of the exciton emission) been reported. Experimentally, for observing a long-lifetime exciton state it needs to satisfy a condition of  $kz \sim 1$ , instead of near-field condition of  $kz \ll 1$ , where  $k = 2\pi n/\lambda$  is the wavevector,  $n$  is the refractive index,  $\lambda$  is the wavelength, and  $z$  is the separation distance between the emitter and metal nanoparticle. Thus, in this paper, we tune the exciton emission wavelength by applying hydrostatic pressure to achieve the condition of  $kz \sim 1$  in order to in detail investigate the coupling between excitons and metal nanoparticles. The studied InAs/GaAs quantum dot (QD) sample is grown by molecular beam epitaxy on a (001) semi-insulating GaAs substrate. After the AlAs sacrificial layer is etched with hydrofluoric acid, the QD film sample is transferred onto an Si substrate covered with Ag nanoparticles. Then the sample is placed in the diamond anvil cell device combined with a piezoelectric ceramic. In this case we can measure the photoluminescence and time-resolved photoluminescence spectra of the QD sample under different pressures. It is found that the observed longest exciton lifetime is  $(120 \pm 4) \times 10$  ns at a pressure of 1.38 GPa, corresponding the exciton emission wavelength of 797.49 nm, which is about 1200 times longer than the exciton lifetime of  $\sim 1$  ns in QDs without the influence of Ag nanoparticles. The experimental results can be understood based on the destructive interference between the quantum dot exciton radiation field and the scattering field of metal nanoparticles. This model proposes a convenient way to increase the emission lifetime of dipoles on a large scale, and is expected to be applied to quantum information processing, optoelectronic applications, fundamental physics researches such as Bose-Einstein condensates.

**Keywords:** InAs/GaAs quantum dots, spontaneous emission rate, Ag nanoparticles, long-lived excitons, hydrostatic pressure

**PACS:** 73.21.La, 73.20.Mf, 78.67.Bf, 07.35.+k

**DOI:** 10.7498/aps.71.20221344

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

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

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



## 静水压力调谐Ag纳米颗粒散射场下量子点激子寿命

黄君辉 李元和 王健 李叔伦 倪海桥 牛智川 窦秀明 孙宝权

## Exciton lifetime of quantum dots under hydrostatic pressure tuned scattering field Ag nanoparticles

Huang Jun-Hui Li Yuan-He Wang Jian Li Shu-Lun Ni Hai-Qiao Niu Zhi-Chuan Dou Xiu-Ming Sun Bao-Quan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 247302 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221344

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221344>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

#### 金纳米颗粒调控量子点激子自发辐射速率

Controlling exciton spontaneous emission of quantum dots by Au nanoparticles

物理学报. 2022, 71(6): 067804 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211863>

#### 第一性原理对CsSnBr<sub>3</sub>施加静水压力后光电性质的探究

First-principles study of photoelectric properties of CsSnBr<sub>3</sub> under hydrostatic pressure

物理学报. 2021, 70(15): 158801 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210397>

#### InAs/GaAs量子点1.3 μm单光子发射特性

1.3 μm single photon emission from InAs/GaAs quantum dots

物理学报. 2018, 67(23): 237802 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181592>

#### 金属纳米柱的端面修饰对自发辐射增强特性的影响

Effect of surface modification of metallic nanorod on spontaneous emission enhancement

物理学报. 2022, 71(16): 166802 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220439>

#### 基于有限元法的光子并矢格林函数重整化及其在自发辐射率和能级移动研究中的应用

Renormalization of photon dyadic Green function by finite element method and its applications in the study of spontaneous emission rate and energy level shift

物理学报. 2018, 67(19): 193102 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180898>

#### GaAs (001)图形衬底上InAs量子点的定位生长

Controllable growth of InAs quantum dots on patterned GaAs (001) substrate

物理学报. 2019, 68(11): 117301 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190317>