

文章编号: 1000-7032(2009)06-0812-06

InAs 单量子点精细结构光谱

李文生¹, 孙宝权^{2*}

(1. 通辽职业学院 生物化工系, 内蒙古 通辽 028000;

2. 中国科学院半导体研究所 超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

摘要: 在 5 K 下, 采用光致发光光谱和时间分辨光谱研究了不同单量子点的精细结构和对应发光光谱的偏振性、单激子/双激子发光光谱和相应发光动力学。给出 InAs 单量子点发光光谱所对应能级的精细结构及激子本征态的偏振特性。当精细结构能级劈裂为零时, 激子的本征态为简并的圆偏振态。而当精细结构能级劈裂大于零时, 一般在几十到几百 μeV , 激子的本征态为非简并的线偏振态。相对于单激子发光寿命, 激子-激子间的散射使单激子的复合发光寿命减小。

关键词: 量子点精细结构光谱; 激子本征态; 激子发光寿命

中图分类号: O472.3; O482.31

PACS: 78.55.Cr

PACC: 7850G; 7855D

文献标识码: A

1 引 言

InAs 单量子点精细结构光谱的研究是一项十分重要的课题。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, 在单光子发射和量子计算等研究领域具有重要的潜在应用前景^[1,2]。从单量子点的研究对象来看, 单量子点具有类原子结构和光谱特性, 如具有原子光谱的类壳层结构, 即 S, P, D, ... 壳层结构等, 低温下具有非常窄的发光峰, 约几十到几百 μeV ^[3]。此外, 在结构对称性和光谱特性上又有区别于单原子、单分子系统, 这主要来源于单量子点本身的结构对称性和电子/空穴系统的多体效应^[3,4]。这些与单量子点光谱相关的深入研究有助于提高单光子发射效率, 弄清其发光的偏振特性, 实现基于双激子辐射复合的纠缠光子态是十分重要的。有关单量子点的结构对称性及相关的发光特性在国外报道的比较多^[5-7], 而国内还没有这方面的研究报道。本文采用光致发光(PL)光谱和时间分辨光谱研究了不同 InAs 单量子点的精细结构和对应发光光谱的偏振性、单激子/双激子发光光谱和相应发光动

力学, 讨论了激子-激子间散射对单激子发光寿命的影响。当精细结构能级劈裂为零时, 激子的本征态为简并的圆偏振态。而当精细结构能级劈裂大于零时, 其激子的本征态为非简并的线偏振态。

2 实 验

量子点样品由分子束外延方法制备, 所用的化学元素有镓源(Ga)、砷源(As)、铝源(Al)和铟(In)。生长样品的衬底为半绝缘 GaAs。生长样品时衬底的温度为 580 $^{\circ}\text{C}$ (GaAs/Al_{0.9}Ga_{0.1}As) 和 450 $^{\circ}\text{C}$ (InAs 量子点)。在生长样品时, 相应的化学源打开, 入射到 GaAs 衬底上进行化学反应而形成。InAs 量子点嵌在一个腔长为一个波长的 GaAs 微腔中, 微腔系由两个 GaAs/Al_{0.9}Ga_{0.1}As 上下分布的布拉格反射器组成 (DBR)。上反射器为 2 对 DBR, 下面反射器为 20 对 DBR。量子点为沉积 2.35 单层 (ML) 的 InAs 层, 其生长速率为 0.001 ML/s。按照这种方法制备的量子点样品, 其量子点的密度非常低, 每平方微米小于一个量子点^[8]。因此, 不需要在样品上制备小的台面或在金属镀层上开透光小孔来分离单个量子点。实验中, 样品放在氦循环制冷的低温测量系统中, 实验温度为 5 K。掺钛蓝宝石脉冲激光器

收稿日期: 2009-01-19; 修订日期: 2009-06-24

基金项目: 国家自然科学基金(60676054)资助项目

作者简介: 李文生(1959-), 男, 内蒙古通辽人, 主要从事有机、无机材料发光的研究。

E-mail: liwensheng20069@126.com

*: 通讯联系人; E-mail: bqsun@semi.ac.cn, Tel: (010)82304870-801

作为激发光源, 激光波长为 750 nm, 脉冲重复频率为 82 MHz, 脉冲宽度为 200 fs。扫描共聚焦显微镜用来(数值孔径 0.5)分辨单个量子点, 量子点的发光光谱由共聚焦显微镜收集, 所用的单色仪焦距为 0.5 m, 探测器为 Si-CCD。时间分辨 PL 光谱测量采用时间关联单光子计数技术来完成, 其时间分辨率为 400 ps。对于偏振发光和发光动力学的测量, 激发光设定为右圆偏振光 (σ^+ , 通过 $\lambda/4$ 来实现), 发光光谱的检测是采用组合 $\lambda/4$ 和 $\lambda/2$ 波片及线性偏振片来完成。

3 结果与讨论

为研究单量子点发光光谱的精细结构及发光的偏振特性, 我们选择了 3 个单量子点作为研究对象, 这 3 个量子点分别对应不同的精细结构劈裂能 (FSS)。图 1 为激子的不同精细结构劈裂的偏振光谱, 激发光源为右圆偏振光 (σ^+), 波长为 750 nm。分别测量样品不同偏振组态 [右圆偏振光 (σ^+), 左圆偏振光 (σ^-), 线形偏振光 π_x 和 π_y] 的发光强度, 其中图 1(a)、(b) 为同一量子点

的光谱结果, 而(c)、(d) 为另一个量子点的光谱结果。在 σ^+ 激发下, 测量的 σ^+ (σ^-) 和 π_x (π_y) 光谱分别由实线和虚线表示。测量的精细结构光谱有两个明显的特征: (1) 在测量精度范围内, σ^+ (σ^-) 和 π_x (π_y) 的发光峰值位置没有移动, 没有出现发光峰劈裂, 即 $FSS \sim 0$ 。(2) 圆偏振光的偏振度定义为 $P_c = [I(\sigma^+) - I(\sigma^-)] / [I(\sigma^+) + I(\sigma^-)]$, 这里 $I(\sigma^+)$, $I(\sigma^-)$ 分别对应测量的 σ^+ 、 σ^- 光谱强度, 则计算的 $P_c = 30\%$ 。线偏振光的偏振度定义为 $P_{lin} = [I(\pi_x) - I(\pi_y)] / [I(\pi_x) + I(\pi_y)]$, 这里 $I(\pi_x)$ 、 $I(\pi_y)$ 分别对应测量的 π_x 、 π_y 光谱强度, 则计算的 $P_{lin} = 4\%$ 。这个值接近于理论值 $P_{lin} = 0$, 小的线偏振度可能来源于测量光谱强度的涨落。而 30% 的圆偏振度来源于光吸收和发光过程的偏振选择定则和光激发的电子/空穴能量弛豫所伴随的自旋弛豫^[9]。因此, 图 1(a)、(b) 光谱对应量子点的激子本征态是两个简并的圆偏振态。与此实验结果相反, 图 1(c)、(d) 测量的偏振光谱出现两个峰。在 σ^+ 激发下, 图 1(c) 显示 π_x (实线, 记为 peak2) 和

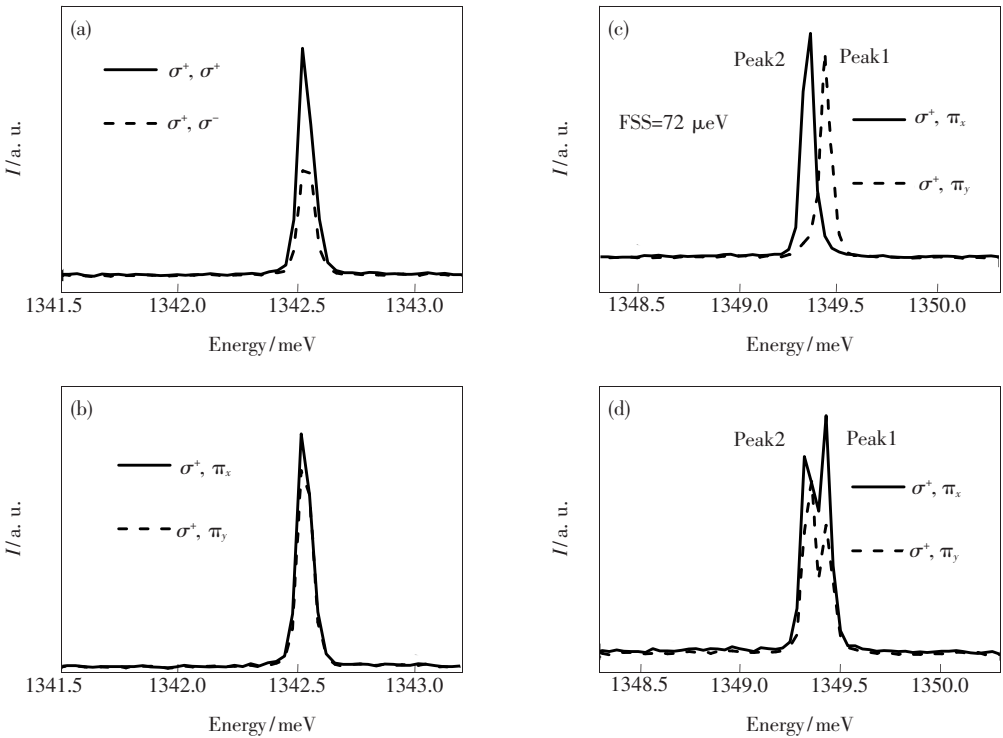


图 1 在 σ^+ 激光激发下, 测量单量子点的 σ 和 π 偏振成分的 PL 强度, 其中(a)、(b)为圆偏振本征态, 对应 $FSS \sim 0$, 而(c)、(d)为线偏振本征态, 对应 $FSS \sim 72 \mu\text{eV}$

Fig. 1 Single QD σ and π components of the polarization PL intensity measured at σ^+ excitation, (a) and (b) correspond to the circular polarization eigenstate with $FSS \sim 0$, (c) and (d) correspond to the linear polarization eigenstate with $FSS \sim 72 \mu\text{eV}$.

π_y (虚线, 记为 peak1) 发光峰, 两者的能量差为 $FSS = 72 \mu\text{eV}$ 。而图 1(d) 对应 σ^+ (实线) 和 σ^- (虚线) 光谱, 可以看到圆偏振光谱对应于图 1(c) 中两个线性偏振态光谱的叠加, 即: $\pi_x = (\sigma^+ + \sigma^-)/2^{1/2}$ 和 $\pi_y = i(\sigma^+ - \sigma^-)/2^{1/2}$ 。因此, 图 1(c)、(d) 的实验结果显示, 量子点激子的本征态是两个非简并的线偏振态, 其 $FSS \sim 72 \mu\text{eV}$ 。这个精细结构劈裂来自于量子点在 xy 平面的限制势的非柱对称性, 这将导致沿晶体 $[110]$ 和 $[\bar{1}\bar{1}0]$ 轴方向的电子/空穴交换相互作用的不同^[4]。另外, 我们在实验中发现, 当量子点的精细结构劈裂 $FSS \sim 0$ 时, 即发光谱为圆偏振态时, 其单光子发射率远大于精细结构劈裂大于 0 的情况。因此, 选择具有圆偏振本征态的单量子点作为单光子发射源, 且具有圆偏振的光子发射是最佳的选择。同时, 要想得到基于单量子点中双激子纠缠光子态的产生也必需满足下面这个条件: 精细结构劈裂 FSS 应小于激子的本征宽度。所以, 研究量子点的精细结构劈裂和如何调谐其精细结构劈裂能的大小是一

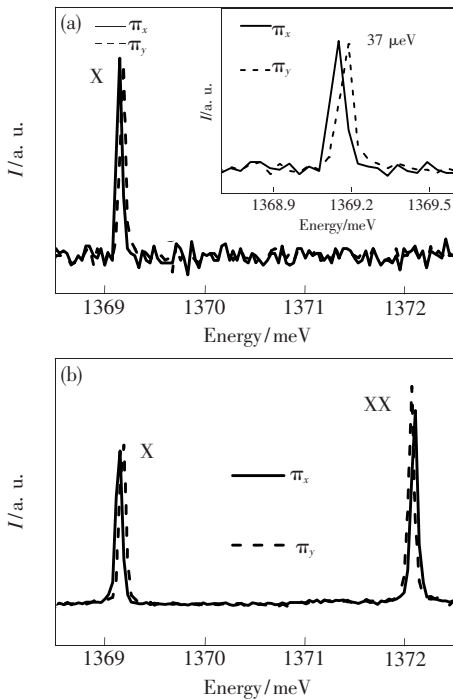


图 2 σ^+ 激光激发下, 测量单量子点 π 偏振成分的 PL 强度。(a) 只有单激子存在时的 PL 结果, 插图为放大的结果且 $FSS \sim 37 \mu\text{eV}$, (b) 同时存在激子和双激子时 PL 结果

Fig. 2 Single QD π components of the polarization PL intensity measured at σ^+ excitation. (a) The PL result of an exciton emission. Inset: shown the $FSS \sim 37 \mu\text{eV}$, (b) The PL results of both exciton and biexciton.

项非常重要的研究课题^[7, 10]。在实验中, 采用调整 FSS 的方法是: (1) 通过给样品快速热退火来改变量子点的平面限制势的对称性, 但这种方法的缺点是不能连续调谐量子点的精细结构劈裂值的大小^[11]。(2) 加横向磁场来调谐量子点的精细结构劈裂值, 利用这种方法实现了纠缠光子对的制备^[7]。(3) 给样品加平面方向的单轴应力以期望调谐量子点平面限制势的对称性, 目前还没有在实验上实现^[10]。

为进一步分析精细结构劈裂、双激子结构, 偏振特性和光谱动力学的关联, 我们研究另一个具有明显激子/双激子光谱特性的单量子点, 如图 2(a) 和(b)所示。其中图 2(a) 为在 σ^+ 激发下, 激发功率为 3 nW, 这时只有单激子的线偏振态 π_x (π_y) 光谱峰 (标记为 X) 存在, 其精细结构劈裂的大小显示在图 2(a) 的插图中, $FSS \sim 37 \mu\text{eV}$ 。

随着激发功率的增加, 在激子发光峰的高能处出现一个新的发光峰 (标记为 XX)。为了识别

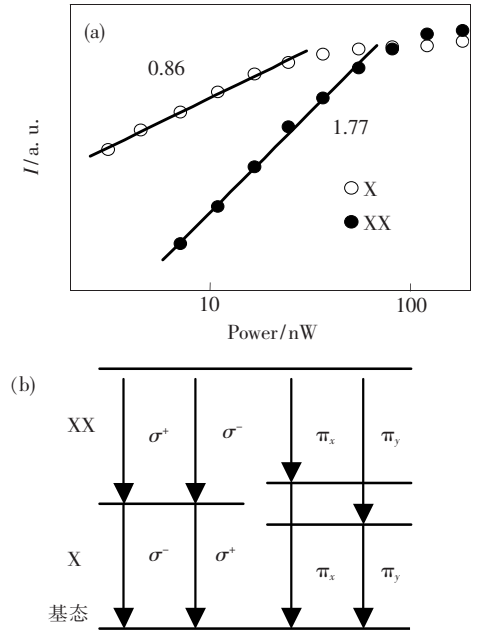


图 3 (a) PL 强度与激发功率的对数坐标表示, 说明单激子和双激子发光机制。(b) 双激子跃迁示意图, 左边对应圆偏振本征态, 对应 $FSS \sim 0$ 。右边对应线偏振本征态, 对应 $FSS > 0$

Fig. 3 (a) PL intensity vs. excitation power in logarithmic scales, corresponding to the PL emissions of the exciton and biexciton; (b) The schematic diagram shown the cascade PL emission of the biexciton, the left one is the circular eigenstate with $FSS \sim 0$, and the right one is the linear eigenstate with $FSS > 0$.

发光峰 XX 的来源, 我们测量了发光峰 X 和 XX 的激发功率依赖关系, 实验结果显示在图 3(a) 中, 其中测量发光强度和激发功率为对数坐标。在较低激发功率范围内, X 和 XX 发光强度随激发功率具有线性关系。激子的发光强度 (I) 正比于激发功率 (P), 可以写成 $I(\text{PL}) \sim P^n$, 这里 $n=1$ 或 2 分别表示发光来自于单激子或双激子发光过程。拟合图 3(a) 的实验数据显示, n 分别为 0.86 和 1.77, 两者接近 2 倍关系, 且 1.77 接近理论值 2。因此, 发光峰 XX 来自于量子点的双激子的发光峰。

根据图 2(b) 激子和双激子发光峰对应于线偏振 (π_x 和 π_y) 发光的实验结果 (这里激发功率为 150 nW), 我们可以得到 X 和 XX 发光能级组态的示意图, 如图 3(b) 所示, 这里激子 X 的角动量投影为 1, 而双激子 XX 的角动量投影为 0。图中标出了对于双激子发光的级联过程, 即从 XX 发光到 X 发光过程。由于光子的角动量为 1, 所以圆偏振的发光的级联过程为: XX(σ^+) 发光到 X(σ^-) 发光, 或 XX(σ^-) 发光到 X(σ^+) 发

光, 两者在频谱上不可分辨, 它们是纠缠光子对发光过程, 其波函数可以表示为 $\Psi = (\sigma^+ \sigma^- + \sigma^- \sigma^+)/2^{1/2}$ [7]。而当 $FSS >$ 激子的本征展宽时, 本征态为线偏振态, 在频谱上 π_x 和 π_y 的发光是可分辨的, 线偏振发光的级联过程不是纠缠光子 [7]。

双激子束缚能的大小和正负值问题。图 2(b) 的实验结果显示, XX 的束缚能为 3 meV 且为正值, 通常称为反束缚态, 这种情况只有在小量子点中出现 [12]。在大量子点中, 双激子的束缚能为负的。在单量子点的光谱实验中, 观测到双激子的两种束缚态与量子点尺度的关系 [12]。

下面我们讨论双激子态存在对单激子电子-空穴复合寿命的影响。如图 4 所示, 其中 (a)、(b) 为只有 X 发光时激子的偏振发光特性: (1) π_x 发光寿命为 1.6 ns, π_y 发光寿命为 1.49 ns。(2) 两者发光寿命的不同起源于电子/空穴在两个线偏振本征态间的自旋弛豫机制, 这一问题将在其它文章中详细讨论。这里, 发光强度衰变曲线的测量是采用单光子关联时间分辨计数技术完

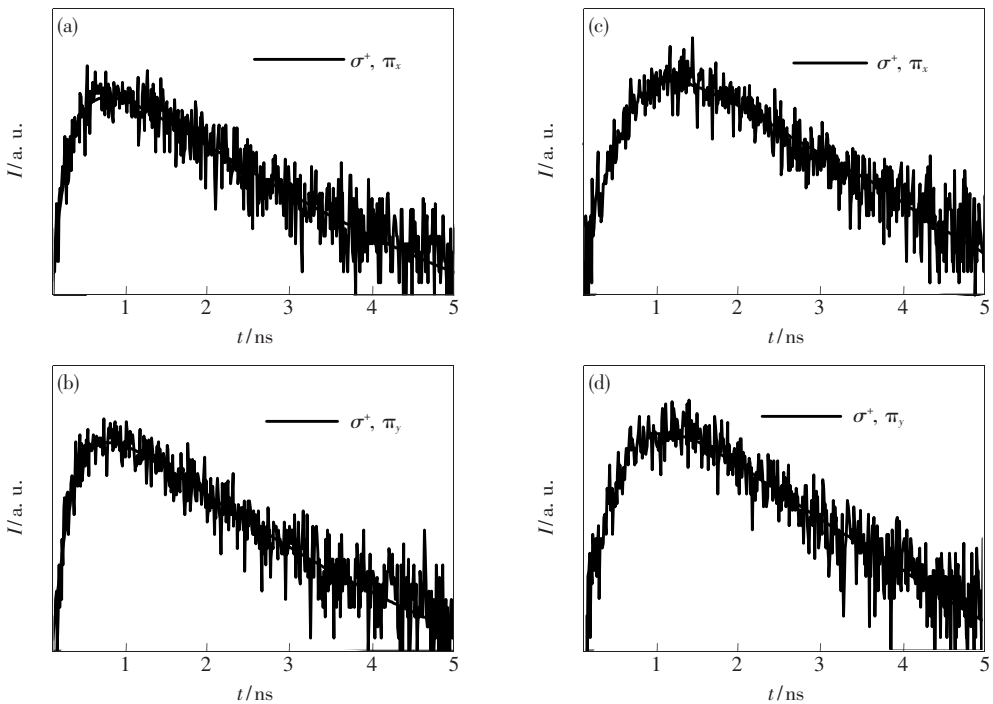


图 4 (a)、(b) 为单激子态存在时 PL 随时间的变化, 对应的时间常数分别为 1.6 ns (π_x 成分) 和 1.49 ns (π_y 成分), (c)、(d) 为双激子存在时, 单激子的 PL 随时间的变化, 对应的时间常数分别为 1.37 ns (π_x 成分) 和 1.26 ns (π_y 成分)

Fig. 4 (a) and (b) The PL intensity of the exciton vs. time, corresponding to the time constants of 1.6 and 1.49 ns for π_x and π_y components, respectively. (c) and (d) the PL intensity of the exciton vs. time when there exist biexciton, corresponding to the time constants of 1.37 and 1.26 ns for π_x and π_y components, respectively.

成的,量子点的实际寿命是通过数学上的卷积拟合得到的。

随着激发功率的增加,XX 发光出现。当激发功率为 150 nW 时,测量的 X 和 XX 发光强度如图 2(b)所示。在此激发条件下,即存在 XX 态时,测量 X 的发光寿命如图 4(c)、(d),其寿命分别为 1.37,1.26 ns。则相对于仅有 X 发光情况,当 XX 存在时,X 的发光寿命明显变小。这应归于激子-激子间的散射造成的。这种由激子-激子间的散射导致的激子寿命的减小只能在单量子点精细结构光谱中观测到,而多量子点的系综统计结果是不可能测量这种小的变化。

4 结 论

量子点精细结构对实现明亮单光子发射和纠缠光子对的产生是十分重要的。本文从实验角度出发研究了不同单量子点精细结构偏振发光光谱,单激子/双激子发光光谱和发光动力学,得出的主要结论是:(1)给出 InAs 单量子点发光光谱能级精细结构及对应的激子本征态的偏振特性。(2)当精细结构劈裂为零时,激子的本征态为圆偏振态,而当精细结构劈裂大于零时,其激子的本征态为线偏振态。(3)激子-激子间的散射使单激子的发光复合寿命减小。

参 考 文 献:

- [1] Yamamoto Y, Pelton M, Santori C, *et al.* *Semiconductor Spintronics and Quantum Computing* [M]. Edited by Awschalom D D, Loss D, Samarth N, Berlin: Springer, 2002, 277.
- [2] Yuan Z, Kardynal B E, Stevenson R M, *et al.* Electrically driven single-photon source [J]. *Science*, 2002, **295**(5552): 102-105.
- [3] Gammon D, Snow E S, Shanabrook B V, *et al.* Fine structure splitting in the optical spectra of single GaAs quantum dots [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76**(16):3005-3008.
- [4] Hameau S, Guldner Y, Verzelen O, *et al.* Strong electron-phonon coupling regime in quantum dots:evidence for everlasting resonant polarons [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, **83**(20):4152-4155.
- [5] Bayer M, Kuther A, Forchel A, *et al.* Electron and hole g factors and exchange interaction from studies of the exciton fine structure in InGaAs quantum dots [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, **82**(8):1748-1751.
- [6] Paillard M, Marie X, Renucci P, *et al.* Spin relaxation quenching in semiconductor quantum dots [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **86**(8):1634-1637.
- [7] Stevenson R M, Young R J, Atkinson P, *et al.* A semiconductor source of triggered entangled photon pairs [J]. *Nature* (London), 2006, **439**(7073):179-182.
- [8] Huang S S, Niu Z C, Ni H Q, *et al.* Fabrication of ultra-low density and long-wavelength emission InAs quantum dots [J]. *J. Crystal Growth*, 2007, **301-302**:751-754.
- [9] Kalevich V K, Paillard M, Kavokin K V, *et al.* Spin redistribution due to Pauli blocking in quantum dots [J]. *Phys. Rev. B*, 2001, **64**(4):045309-1-6.
- [10] Seidl S, Högelea A, Kronera M, *et al.* Tuning the cross-gap transition energy of a quantum dot by uniaxial stress [J]. *Phys. E*, 2006, **32**(1-2):14-16.
- [11] Kiraz A, Michler P, Becher C, *et al.* Cavity-quantum electrodynamics using a single InAs quantum dot in a microdisk structure [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2001, **78**(25):3932-3934.
- [12] Narvaez G A, Bester G, Zunger A. Excitons, biexcitons, and trions in self-assembled (In,Ga)As/GaAs quantum dots: Recombination energies, polarization, and radiative lifetimes versus dot height [J]. *Phys. Rev. B*, 2005, **72**(24): 245318-1-10.

Fine-structure Spectra in InAs Single Quantum Dots

LI Wen-sheng¹, SUN Bao-quan²

(1. Department of Biology and Chemical Engineering, Tongliao Professional Education College, Tongliao 028000, China;

2. NLSM, Institute of Semiconductors, CAS, Beijing 100083, China)

Abstract: Quantum dots (QDs) samples studied in the experiment were grown by molecular-beam epitaxy on a semi-insulating GaAs substrate. It consists of an InAs QD layer embedded in the middle of a 1λ GaAs cavity. The GaAs cavity is sandwiched between a 2-period GaAs/ $\text{Al}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{As}$ distributed Bragg reflector (DBR) on top and a 20-period GaAs/ $\text{Al}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{As}$ DBR on bottom. The QD layer was formed by depositing 2.35 monolayers (ML) InAs at a growth rate of 0.001 ML/s. The sample has an ultralow density of the QDs. Therefore, we can isolate single QDs without the use of the nanoscaled masks or mesas. In the experiment the sample was cooled to 5 K and a Ti:sapphire laser operating at 750 nm was used as an excitation source. The scanning confocal microscopy with an objective (NA: 0.5) was used to spatially resolve single QDs. The photoluminescence (PL) and time-resolved PL measurements were carried out by time-correlated single-photon counting setup. The excitation light is a right circular polarization light. The polarization PL and time-resolved PL emissions were analyzed by a $\lambda/4$ and $\lambda/2$ wave plate and a linear polarizer to distinguish different polarization components. All the experiments were performed at low excitation power, which ensures the luminescence working in the single photon emission mode. The main conclusions were given:

(1) Both PL peaks of the circular and linear polarization are not shifted and split and the corresponding circular (linear) polarization degree is 30% (4%). In this case, the fine-structure splitting (FSS) is close to zero and the corresponding exciton eigenstates are degenerate circular polarization states.

(2) Both PL peaks of linear polarization components (π_x and π_y emissions) are splitting with the FSS of tens or hundreds of eV. In this case, the corresponding exciton eigenstates are two linear polarization states.

(3) Depending on the exciton-exciton scattering, the exciton radiative recombination is modified, *i. e.*, when there is a biexciton the decay time of the exciton decreases, compared to the case of only exciton existence at lower excitation power.

Key words: QD fine-structure spectra; exciton eigenstate; exciton decay time

CLC number: O472.3; O482.31

PACS: 78.55.Cr

PACC: 7850G; 7855D

Document code: A