

# 行政院國家科學委員會專題研究計畫 期中進度報告

## 單一量子點之磁光與糾纏態特性(1/2) 期中進度報告(精簡版)

計畫類別：個別型

計畫編號：NSC 99-2628-E-009-092-

執行期間：99年08月01日至100年07月31日

執行單位：國立交通大學電子工程學系及電子研究所

計畫主持人：林聖迪

處理方式：本計畫可公開查詢

中華民國 100 年 09 月 16 日



# 單一量子點之磁光與糾纏態特性

計畫編號：NSC 99-2628-E-009-092

執行期間：99年 08月 01日至100年 7月 31日

主持人：林聖迪

## 一、摘要

在此為期兩年的計畫中，我們進行光激發自組式量子點的發光特性之相關研究。第一部分為單一量子點發光頻譜與磁場的響應，第二部分為單一量子點的糾纏態特性。在第一年中基於磁場響應實驗上觀察到 negative trion  $X^-$  的異常 diamagnetic shift，以及其不同於傳統反磁性的順磁性行為，因此我們發展了一套 Hartree-approximation 的計算方法來模擬量子點內不同 exciton complexes 的發光行為，模擬結果顯示出與實驗結果相當一致，並且成功的定性解釋了這種異常行為，我們發現載子間的庫倫交互作用對磁場的響應跟量子點尺寸大小有相當大的關係，且此種異常行為即為載子間庫倫作用所主導，因此由實驗及模擬結果顯示我們已達到初期設定之目標。量子點糾纏態的部分，由於糾纏態特性與 exciton 及 biexciton 的 fine structure splitting (FSS) 相關，因此我們進行了 FSS 的量測與分析，結果顯示由於量子點不對稱性造成的 FSS 約在幾十個  $\mu\text{eV}$  之間。目前正在進行利用水平電場來消除 FSS 以達到糾纏態特性的元件製備。

## 二、計畫緣由與目的

半導體奈米結構因為其微小的尺寸而具有不同於巨觀世界的新穎性質，且可應用於許多元件上，如半導體雷射、紅外線偵測器等，因此在最近幾年吸引了許多團隊的投入研究。在不同的維度下，半導體奈米結構特殊物理性質是一件非常有趣且值得深入研究的主體。被稱作量子點的零維系統由於分裂的 density of states 而有其獨特的物理現象，量子點中每個 state 最多只能填入上下自旋的兩顆 carriers，因此在 conduction band 的電子及 valence band 的電洞有機會 recombine 而放出單一光子成為

single photon emitter 的來源。

為了了解量子點的基本物理特性，常見的方法有藉由量子點的 photoluminescence (PL) 頻譜，進而研究量子點內部的電子結構。量子點對磁場的響應也是一項研究重點，藉由磁場響應分析出的 g-factor 和 diamagnetic coefficient 等參數，可幫助我們對自組性量子點的結構以及量子點內載子的交互作用有更深入的了解。

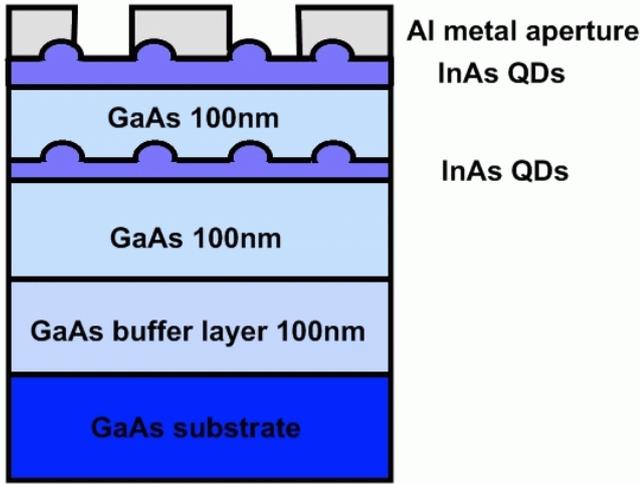
近幾年來，以單一量子點作為產生糾纏態光子對來源的研究受到很大的關注。理論上，完美量子點的 exciton 和 biexciton 是一組有糾纏性質的光子對。然而，真實量子點因為其形狀不對稱性、strain 等因素會影響並破壞原本的糾纏態特性。糾纏態特性與 exciton 和 biexciton 的 fine structure splitting (FSS) 有關，許多方法被提出來消除 FSS，例如施加水平磁場、熱退火、施加垂直方向磁場等。

我們計畫的目標便是研究單一量子點的磁場響應以及利用施加水平方向電場的方式修正 FSS，期待可以增加量子點作為糾纏態光子對來源的可能性。

## 三、研究方法及成果 (III. Method and result)

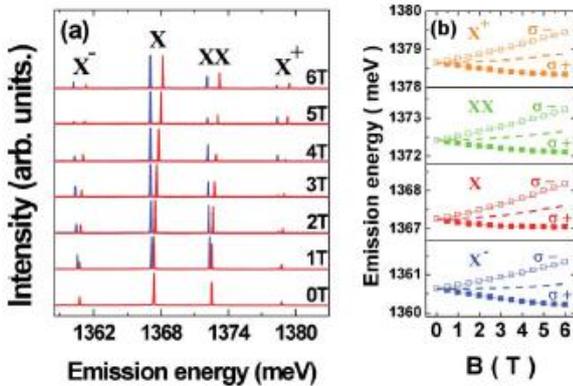
### 第一部分：量子點與磁場響應

如同我們所提出的 proposal，我們使用  $\mu\text{-PL}$  系統量測單一量子點在垂直磁場以及低溫下 (5-8K) 的 emission 頻譜。試片是用 MBE 在 (001) 方向成長的 Stranski-Krastanow mode InAs/GaAs 量子點，我們在試片鍍上約 100nm 的鋁當 mask，並利用 Ebeam-writer 定義和挖出約 300nm 寬的光窗，以便 laser 只激發光窗內的單一量子點，進而觀察單一量子點的發光，圖一即為樣品結構。



圖一：InAs/GaAs量子點樣品結構

我們量測單一量子點對磁場的響應，如圖二為四種不同 exciton complexes 在磁場下的發光頻譜（註： $X$ 、 $XX$ 、 $X^+$ 、 $X^-$  分別是 exciton、biexciton、positive trion 及 negative trion）。



圖二:exciton complexes隨磁場的發光頻譜

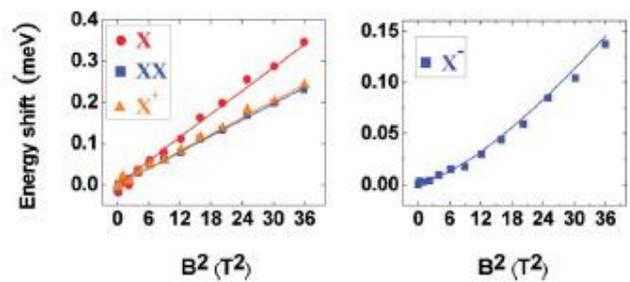
經由參數粹取，我們得到這四種 exciton complexes 的 g-factor 都約在  $3 \mu\text{eV/T}$ 。在 diamagnetic shift 方面，不同的 exciton complexes 對磁場有不同的響應，如圖三所示，我們可以看出  $X$ 、 $XX$ 、 $X^+$  的 diamagnetic shift 與磁場呈現傳統上的二次方 ( $\Delta E = \gamma B^2$ ) 關係，特別是  $X^-$  的 diamagnetic shift 與磁場則呈現出更高次方項相關，我們認為這是因為量子點內載子間的庫倫交互作用造成的。為了解釋實驗上觀察到的  $X^-$  的異常 diamagnetic shift，為此我們發展

了一套 Hartree approximation 的方法來模擬計算載子的 confinement energy 以及載子間的庫倫交互作用受到磁場的影響，

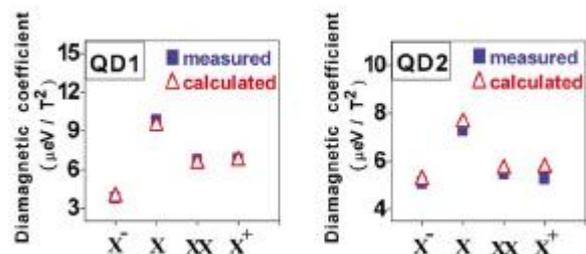
$$[H_{sp}(\vec{r}_i) + V_H(\vec{r}_i)]\phi_n(\vec{r}_i) = \varepsilon_n^i \phi_n(\vec{r}_i), \quad (1)$$

$H_{sp}(\vec{r}_i)$  是單一載子不受交互作用的 Hamiltonian， $V_H(\vec{r}_i)$  量子點內其他載子造成的 Hartree potential， $\varepsilon_{n,i}$  是 eigenenergy， $\phi_n(\vec{r}_i)$  是波函數，對於  $N$  個 particle 的 exciton complex 系統，我們使用 self-consistent 的方法解  $N$  個互相 coupled 的 Eq. (1)。如圖四，根據我們的理論模型，對 diamagnetic coefficient ( $\gamma$ ) 的計算結果相當符合實驗結果，基本上有  $\gamma_{XX} > \gamma_X \cong \gamma_{X^+}$  的趨勢，如先前所說  $X^-$  的 diamagnetic shift 與磁場不是二次方關係，但如果我們仍然以二次方關係做 fitting，可以發現  $\gamma_{X^-}$  特別的小。

為了釐清  $\gamma_{X^-}$  的這種異常表現，我們對不同尺寸大小的圓錐形量子點做計算，結果如圖五(a) 所示，對較大尺寸的量子點 ( $D > 16\text{nm}$ )，四種 exciton complexes 的 diamagnetic coefficient 隨著尺寸變大而增加，這是因為 diamagnetic coefficient 正比於載子的波函數半徑。然而對小尺寸的量子點 ( $D < 16\text{nm}$ ) 而言，隨著量子點變小，計算上的  $\gamma_X$  變大，而  $\gamma_{XX}$  和  $\gamma_{X^+}$  沒有太大變化，有趣的是  $\gamma_{X^-}$  非常快速的變小。

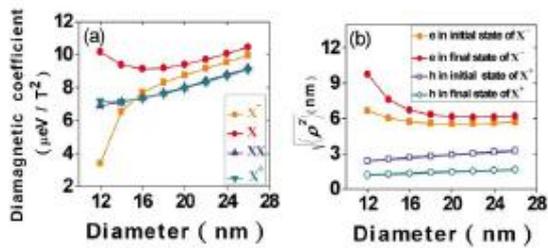


圖三:exciton complexes能量對  $B^2$  作圖



圖四：實驗及計算的 diamagnetic coefficient 比較，QD1和QD2為不同的兩顆量子點。

對 negative trion  $X^-$  而言，initial state 包含有兩顆電子及一顆電洞，在 recombine 後的 final state 則只剩下一顆電子，因此  $X^-$  的 diamagnetic shift 與 initial state 與 final state 的 diamagnetic response 都有相關。因此，我們必須討論  $X^-$  在放出光子前後載子波函數橫向半徑  $l_e \equiv \sqrt{\langle \rho_e^2 \rangle}$  的變化情形。圖5(b)顯示了計算得到的  $X^-$  的  $l_{e,i}$  和  $l_{e,f}$  (initial state 和 final state 電子的橫向半徑)，可以發現到  $l_{e,i}$  總是比  $l_{e,f}$  還要小，我們可以了解到這是因為在 initial state 的電洞吸引住了電子，而在 final state 只存在一顆電子，少了電洞的庫倫力，於是電子的波函數變更為向外擴展。同時  $l_{e,i}$  與  $l_{e,f}$  的差異隨著量子點變小而變大，這樣的趨勢是因為當量子點變得夠小時而無法再有效地侷限住電子，對 final state 而言因為少了電子的庫倫吸引力，於是電子波函數就會快速地向外擴展而穿遂進周圍的 barrier material。在這樣一個 weak confinement regime 裡，電子波函數對庫倫作用力變得相當敏感。因此我們可以提出一個解釋，小尺寸量子點因為  $l_{e,f}$  增加，所以 final state 的 diamagnetic shift 也增加，造成整體的 diamagnetic shift 變小。



圖五：實驗及計算的 diamagnetic coefficient 比較，不同尺寸量子點的 diamagnetic coefficient 及載子橫向半徑。

對於  $X^-$  的 diamagnetic shift 與磁場則呈現出更高次方項相關以及  $X^-$  的順磁性現象也與量子點尺寸大小有關。為了解釋這樣的異常行為，我們考慮載子的 single particle 能量， $X^-$  的 diamagnetic shift ( $\Delta E$ ) 可以表示成 eq.2：

$$\Delta E_{X^-}(B) \approx \gamma_{X^-} B^2 + \kappa_{X^-} B^4 + \dots, \quad (2)$$

$$\gamma_{X^-} = (2\gamma_{e,i} + \gamma_{h,i}) - \gamma_{e,f}$$

$$\kappa_{X^-} = (2\kappa_{e,i} + \kappa_{h,i}) - \kappa_{e,f}$$

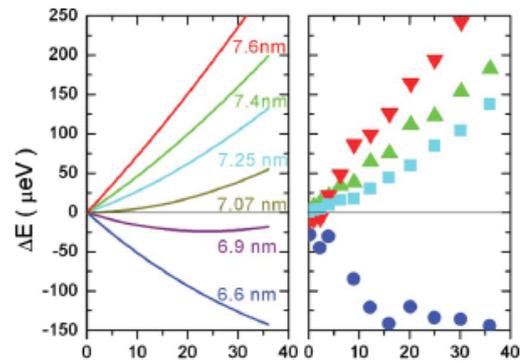
$$\gamma_{\alpha} = e^2 \ell_{\alpha}^2 / 8m_{\alpha}$$

$$\kappa_{\alpha} = -e^4 \ell_{\alpha}^6 / 128m_{\alpha} \hbar^2$$

由於  $l_h < l_e$  以及  $m_h \gg m_e$ ，所以可以忽略掉電洞的效應。我們可以分成三種情形來討論

1. 當量子點夠大時 ( $\sqrt{2} l_{e,i} > l_{e,h}$ )， $\Delta E$  與磁場維持傳統的二次方關係。
2. 當量子點較小時 ( $\sqrt{2} l_{e,i} = l_{e,h}$ )， $\gamma_{X^-} = 0$ ， $\Delta E$  與磁場成四次方相係。
3. 當量子點更小時 ( $\sqrt{2} l_{e,i} < l_{e,h}$ )， $\gamma_{X^-}$  變為負數，此即為實驗上所觀察到順磁性特性的區域。

圖六為不同量子點地 diamagnetic shift，可以發現不管實驗或理論計算上，都顯示了上面所述的三種情形（二次方相依、四次方相依、順磁特性），且實驗與理論計算相當符合。



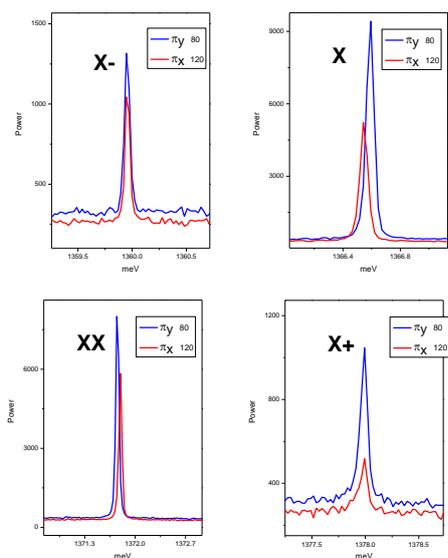
圖六：實驗（右圖）與計算（左圖）的異常 diamagnetic shift 行為。

第二部分：製備施加水平電場元件，修正量子點 fine structure splitting (FSS)

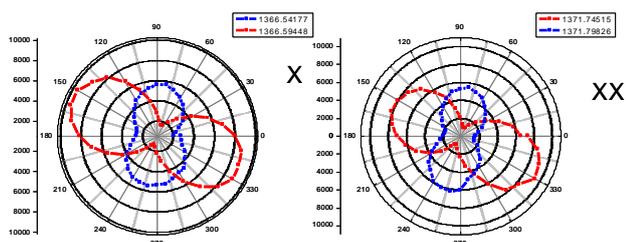
在此計畫第一年的第二個部分，製備可以施加水平電場的量子點元件，希望藉由水平電場修正量子點形狀的不對稱性，進而修正 FSS

以期望達到糾纏態光子對的產生。

我們進行了單一量子點 exciton 及 biexciton 的 polarization resolved PL 量測，結果如圖七所示。可以看到 X 和 XX 兩種不同線性偏極化的光分裂，此能量分裂即為 FSS，我們的樣品得到的 FSS 大約都在幾十個  $\mu\text{eV}$  左右，由圖八可以看出兩個分裂開的光極化方向大約夾九十度左右。



圖七：Polarization resolved PL 量測，fine structure splitting 行為。

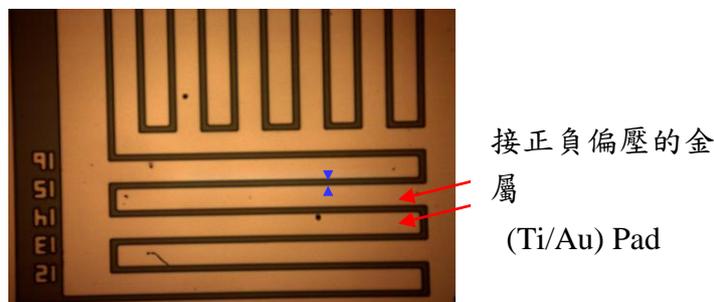


圖八：X 和 XX 因為 FSS 分裂開的兩個能量，峰值強度隨著極化方向的變化。

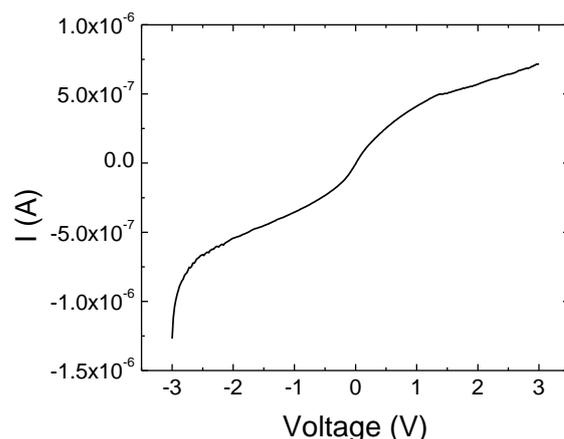
於是接下來便進行水平電場元件的製備，圖九為實際元件正視圖，在兩端金屬分別接上正負偏壓，以至於在中間 channel 部分的量子點被備施加一水平電場。由於不希望施加電壓造成 charge 進入量子點內影響 exciton complexes，所以金屬與半導體界面為 schottky

contact，圖十的 I-V 曲線顯示元件的確為 schottky contact。

結果顯示第一年的目標，我們已經達成，目前正進行施加電場後，量子點的 FSS 變化的量測。



圖九：水平電場元件正視圖。藍色部分正負偏壓間距離為  $2\ \mu\text{m}$  或  $5\ \mu\text{m}$ 。



圖十：元件之 I-V 曲線。

# 國科會補助計畫衍生研發成果推廣資料表

日期:2011/09/16

國科會補助計畫	計畫名稱: 單一量子點之磁光與糾纏態特性(1/2)
	計畫主持人: 林聖迪
	計畫編號: 99-2628-E-009-092- 學門領域: 固態電子
無研發成果推廣資料	

99 年度專題研究計畫研究成果彙整表

計畫主持人：林聖迪		計畫編號：99-2628-E-009-092-					
計畫名稱：單一量子點之磁光與糾纏態特性(1/2)							
成果項目		量化			單位	備註（質化說明：如數個計畫共同成果、成果列為該期刊之封面故事...等）	
		實際已達成數（被接受或已發表）	預期總達成數(含實際已達成數)	本計畫實際貢獻百分比			
國內	論文著作	期刊論文	0	0	100%	篇	
		研究報告/技術報告	0	0	100%		
		研討會論文	0	0	100%		
		專書	0	0	100%		
	專利	申請中件數	0	0	100%	件	
		已獲得件數	0	0	100%		
	技術移轉	件數	0	0	100%	件	
		權利金	0	0	100%	千元	
	參與計畫人力 (本國籍)	碩士生	2	2	100%	人次	
		博士生	2	2	100%		
		博士後研究員	0	0	100%		
		專任助理	0	0	100%		
國外	論文著作	期刊論文	1	2	100%	篇	
		研究報告/技術報告	0	0	100%		
		研討會論文	0	0	100%		
		專書	0	0	100%	章/本	
	專利	申請中件數	0	0	100%	件	
		已獲得件數	0	0	100%		
	技術移轉	件數	0	0	100%	件	
		權利金	0	0	100%	千元	
	參與計畫人力 (外國籍)	碩士生	0	0	100%	人次	
		博士生	0	0	100%		
		博士後研究員	0	0	100%		
		專任助理	0	0	100%		

<p style="text-align: center;">其他成果</p> <p>(無法以量化表達之成果如辦理學術活動、獲得獎項、重要國際合作、研究成果國際影響力及其他協助產業技術發展之具體效益事項等，請以文字敘述填列。)</p>	無
---	---

	成果項目	量化	名稱或內容性質簡述
科 教 處 計 畫 加 填 項 目	測驗工具(含質性與量性)	0	
	課程/模組	0	
	電腦及網路系統或工具	0	
	教材	0	
	舉辦之活動/競賽	0	
	研討會/工作坊	0	
	電子報、網站	0	
	計畫成果推廣之參與(閱聽)人數	0	

# 國科會補助專題研究計畫成果報告自評表

請就研究內容與原計畫相符程度、達成預期目標情況、研究成果之學術或應用價值（簡要敘述成果所代表之意義、價值、影響或進一步發展之可能性）、是否適合在學術期刊發表或申請專利、主要發現或其他有關價值等，作一綜合評估。

1. 請就研究內容與原計畫相符程度、達成預期目標情況作一綜合評估

達成目標

未達成目標（請說明，以 100 字為限）

實驗失敗

因故實驗中斷

其他原因

說明：

2. 研究成果在學術期刊發表或申請專利等情形：

論文： 已發表  未發表之文稿  撰寫中  無

專利： 已獲得  申請中  無

技轉： 已技轉  洽談中  無

其他：（以 100 字為限）

3. 請依學術成就、技術創新、社會影響等方面，評估研究成果之學術或應用價值（簡要敘述成果所代表之意義、價值、影響或進一步發展之可能性）（以 500 字為限）

We found the interesting ' ' paramagnetic' ' behaviour in our single QDs's magneto-PL. The results can be well explained by our model considering the initial and final states of negatively-charge exciton. This work deepens our understanding of QDs' magnetic response and will be useful in our study in the 2nd year.