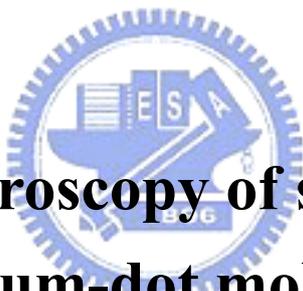


國立交通大學
電子物理研究所
碩士論文

單一砷化銦鎵雙耦合量子點之
光學特性量測分析



**Optical spectroscopy of single InGaAs
quantum-dot molecules**

研究生：王聖允

指導教授：張文豪 教授

中華民國九十七年八月

單一砷化銦鎵雙耦合量子點之光學特性量測分析

Optical spectroscopy of single InGaAs quantum-dot molecules

研究生：王聖允

Student : Sheng-Yun Wang

指導教授：張文豪

Advisor : Wen-Hao Chang

國立交通大學

電子物理系



Submitted to Department of Electrophysics
College of Science
National Chiao Tung University
in partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of
Master
in

Electrophysics

August 2008

Hsinchu, Taiwan, Republic China

中華民國九十七年八月

單一砷化銦鎵雙耦合量子點之光學特性量測分析

研究生：王聖允

指導教授：張文豪 教授

國立交通大學電子物理研究所

摘要

本論文討論雙層砷化銦鎵量子點堆疊而成的單一垂直耦合雙量子點的螢光光譜。藉由改變功率和偏振方向分析，觀察譜線強度隨功率的變化以及其精細結構分裂，可分辨出直接單激子和間接單激子及雙激子。透過改變激發光的能量，則進一步辨認出帶負電激子。在變溫的過程中，由強度的消長發現了直接單激子態和間接單激子態之間具有單一方向的能量轉換。為了解釋這個現象，我們提出速率方程式模型來模擬實驗結果，藉由擬合的參數判斷此轉換是源自於聲子協助的電洞非共振穿隧效應。透過變功率螢光量測，高溫下譜線強度比值會隨著激發功率而改變，可得到此非共振的電洞穿隧效應的輔助證據。由時間解析光譜量測結果，得到激子態的半衰期不隨溫度改變，代表著激子態佔據量子點分子的機率確實因為溫度的不同而有消長。

Optical spectroscopy of single InGaAs quantum-dot molecules

Student : Sheng-Yun Wang

Advisor : Dr. Wen-Hao Chang

Institute of Electrophysics
National Chiao Tung University

Abstract

The photoluminescence (PL) of single quantum dot molecules (QDMs) formed by two closely stacked $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ layers is observed. Similar pattern of photoluminescence were investigated in different QDMs. They can be identified as direct exciton, indirect exciton and biexciton by power dependent and polarization resolved micro-PL measurements. We also confirmed negative charged exciton by the spectra of different excitation energy. With the increasing temperature, we found that the intensity varied with a crossing between direct exciton and indirect exciton. It indicated a directional transfer of hole between the two adjacent dots. We support a rate-equation model to simulate experiment data and inferred that the phenomenon comes from phonon-assisted nonresonant tunneling of the hole by fitting parameters. Power-dependent PL at different temperature implied such nonresonant tunneling.

誌謝

在碩士班這兩年的日子裡，非常感謝我的指導教授 張文豪老師和 李明知老師的指導，我學到了很多解決問題的方法和思考的方向，在做事情上也更能夠負責及專注，有信心做好每一樣工作。

謝謝文哲學長，你沒有架子的指導和示範讓我總是能跟你毫無顧忌的討論問題；謝謝林萱學姊，在我徬徨時總是能給我有用的協助，在我低沉時鼓勵著我，讓我更有勇氣；謝謝昱安學長，跟你討論問題總是能讓我思考的更深入；謝謝李寧、京玉、少甫學長姐，給了我很多做事情上的建議。

另外也謝謝家賢，做實驗可以有人互相研究討論，找出錯誤的地方，讓事情更順利的進行，並這兩年的時間一起成長，真的是一件很幸運的事；謝謝威宇、飽和、峰毅、毛頭、子德、阿馬、應中，大家一起努力完成碩士的學業，能跟你們在同一間實驗室真好；謝謝阿璋、大雄、小周，你們真的幫了我很多的忙。

最後，謝謝逸君總是溫柔的陪伴在身旁，陪我憂鬱陪我歡笑也給了我很多物理上的想法跟建議，有妳真好；謝謝我父母無私的奉獻和支持，讓我能無憂無慮的走完這段碩士的過程；感謝天，讓我擁有很好的環境和值得珍惜的大家。

目錄

摘要.....	I
Abstract.....	II
致謝.....	III
目錄.....	IV
圖目錄.....	V
第一章 簡介.....	1
第二章 儀器架構.....	3
2.1 樣品結構.....	3
2.2 顯微光激螢光光譜量測系統.....	5
2.3 時間解析光譜量測系統.....	6
第三章 結果與討論.....	8
3.1 量子點分子光激螢光光譜.....	8
3.2 量子點分子的耦合交互作用.....	21
3.3 變溫變功率螢光光譜量測及時間解析光譜量測.....	32
第四章 結論.....	37
附錄 A.....	38
附錄 B.....	41
附錄 C.....	43
參考文獻.....	45

圖目錄

圖 2.1-1	單一砷化銦鎵垂直耦合量子點分子的樣品結構	3
圖 2.1-2	單一砷化銦鎵垂直耦合量子點分子的 TEM 影像	4
圖 2.2-1	顯微螢光光譜量測系統	6
圖 2.3-1	時間解析光譜量測系統	7
圖 3.1-1	灰線部分是群體量子點分子訊號，黑線部分是單一量子點分子訊號 ..	9
圖 3.1-2	不同單一量子點分子的螢光光譜訊號	11
圖 3.1-3	三個不同的激發功率譜圖，隨著激發功率增加，可以觀察到雙激子態 的形成	12
圖 3.1-4	PL 發光強度對激發功率分別取對數作圖。	13
圖 3.1-5	兩個量子點中電子和電洞波函數隨著距離的靠近產生耦合的情形	15
圖 3.1-6	樣品中主要的各種激子態	15
圖 3.1-7	左圖表示雙激子和單激子態因量子點的不對稱，電子電洞交互作用造 成的細微結構分裂。右圖為帶負電激子態的能階圖	17
圖 3.1-8	各種激子態的偏振方向分析光譜	19
圖 3.1-9	不同激發能量的光激螢光光譜，在雷射激發能量跟碳雜質能階產生共 振時，只會激發帶負電荷激子	19
圖 3.1-10	在不同的雷射激發能量下，載子在量子點內部傳輸的情形	21
圖 3.2-1	非對稱量子點分子的電子電洞能階分佈	22
圖 3.2-2	非對稱量子點分子間主要的兩種交互作用	23
圖 3.2-3	溫度從 4K 升至 26K，低功率激發條件下的三條主要譜線，溫度對譜線 能量作圖	24
圖 3.2-4	隨著溫度升高，低功率激發下三個主要譜線強度消長的情形	25
圖 3.2-5	(A)直接和間接單激子態隨溫度增加的能量轉換情形。(B)將 X1 和 X2 的相對強度對溫度作圖，虛線部分為擬合的結果	26
圖 3.2-6	簡化的速率方程式模型	26
圖 3.2-7	熱活化的電洞穿隧效應	29
圖 3.2-8	不同量子點的擬合值 $\left(\frac{\gamma_0}{\gamma_1}\right)$ 取對數對 $\sqrt{V_h - E_A}$ 做圖	31
圖 3.3-1	三個不同的溫度下，直接和間接單激子態光強度對變激發功率分別取 對數後的圖形	33
圖 3.3-2	三個不同溫度下，X2 和 X1 的光強度比值 I_2/I_1 對激發功率取對數繪圖	34
圖 3.3-3	(A)在脈衝雷射激發下，隨溫度變化的光激螢光光譜(B)直接和間接單激 子態的時間解析光譜	36
表 3.2-1	不同量子點直接和間接單激子態的能量差 ΔE_{12} 和使用速率方程式獲得 的各項擬合值	28

附圖 A-1	更詳盡的模擬量子點分子間之能量的轉換速率方程式模型.....	38
附圖 B-1	考慮雙激子態的速率方程式模型.....	41
附圖 B-2	模擬直接和間接單激子態三個不同溫度下的激發強度對光強度作圖	42
附圖 C-1	波長為 400nm 的脈衝雷射激發下，QDM1 的光激螢光譜線.....	44
附圖 C-2	直接和間接單激子態模擬出的時間解析光譜.....	44



第一章 簡介

半導體量子點的應用依照宏觀跟微觀大致分為兩大類：第一是利用群體的平均發光特性製成的各種光電元件，如雷射、光感測元件、LED；第二是利用單量子點的單光子輻射和類似於原子的量子態，運用在量子通訊和固態量子位元上[1][2]。近年來由於單量子點偵測技術的成熟，更多量子點物理現象已被了解，將量子通訊和量子位元的發展更推進一步。

單一半導體量子點是三維束縛的量子結構，經過光或電子的激發後的電子電洞對在量子點內形成激子(exciton)，激子受到量子侷限而產生分裂的能階，因此量子點又被稱為人造原子(artificial atom)。量子點的製造方法很多，其中利用異質介面應力(strain-induced)誘發形成自聚式(Self-assembled)量子點的缺陷最少，使用最為廣泛。異質介面應力的來源是不同材料間晶格常數的不同，造成兩種材料間在介面處會產生彈性形變來改變晶格常數以釋放應力，並形成自聚式的量子點。此量子點不會產生差排(misfit)缺陷，相對於其他方式成長的量子點有更好的光性，因而有廣泛的應用。

將兩個量子點擺在一起形成類似分子的結構，稱為雙耦合量子點或量子點分子，就可以利用一些外加條件如電場、磁場或改變溫度，來控制兩個量子點之間耦合的程度[3]。因此量子點分子比單一量子

點有更好的應用和操控性，而辨認各種條件下激子態的分佈便為一項主要的工作。

當兩個相鄰的量子點電子或電洞能階相同時，量子點分子的耦合由共振穿隧效應(resonant tunneling)主導，量子態會混成束縛和反束縛態(bonding and antibonding state)兩個不同的能階，就像是兩個相鄰有限的位能井中，波函數的分佈情形。電子和電洞的能階高低主要取決於量子點的大小，當兩相鄰量子點大小相異時，由於分開的電子或電洞能階而使得共振穿隧效應被壓抑，造成耦合強度降低。現在已經有文獻成功的透過調變電場來改變量子點能階的高低，而達到控制量子點間的耦合程度。但在非對稱的量子點分子中，除了電場外，聲子對於量子點間的耦合也扮演著十分重要的角色。非共振的穿隧效應和聲子幫助的 Förster 能量轉移機制都有可能影響量子點之間的耦合，因此辨認何種能量轉移機制在主導耦合，成為另一個非常重要的議題。

在本論文中，我們討論了單一量子點分子的螢光光譜，藉由改變功率和偏振方向分析，分辨出了直接單激子和間接單激子及雙激子。在變溫的過程中，發現了直接單激子態和間接單激子態之間具有單一方向的載子轉換。我們提出了速率方程式模型來模擬實驗結果，並判斷出此載子轉換是源自是熱活化的電洞穿隧效應。從變溫及變功率螢光光譜量測，得到此效應的另一證據。

第二章 儀器架構

2.1 樣品結構

我們的樣品成長方法是使用有機金屬化學氣相沉積法 (MOCVD)，先在 n 型砷化鎵(n^+ -GaAs)基板(001)方向上先成長約 100 nm 的緩衝層，在緩衝層上長 100nm 的砷化鎵，接著依序長上 500 nm 砷化鋁鎵($\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}$)與 80nm 砷化鎵，成長溫度為 700°C 。接著成長兩層垂直堆疊的砷化銦鎵($\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$)的量子點，中間用厚度 5nm 的砷化鎵作區隔，成長溫度為 500°C ，樣品結構如圖 2.1-1。

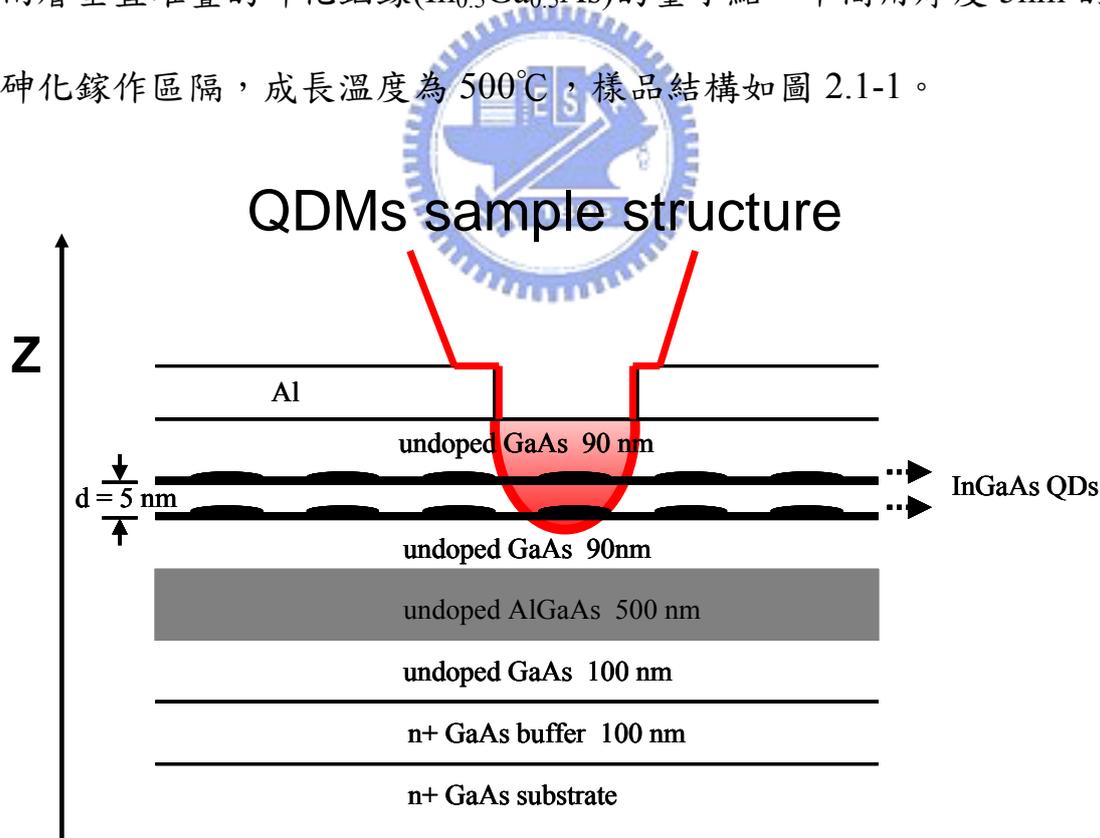


圖 2.1-1 單一砷化銦鎵垂直耦合量子點分子的樣品結構

利用控制成長的速度和其他長晶條件，使樣品的量子點密度很低，約每平方公分 10^8 至 10^9 個量子點。最後在樣品上再覆蓋一層 80nm 的砷化鎵。由穿隧式電子顯微鏡(TEM)可以發現，量子點為類似透鏡的形狀，高度約 3nm，直徑約為 18nm，兩個量子點的間距約為 5nm，如圖 2.1-2。

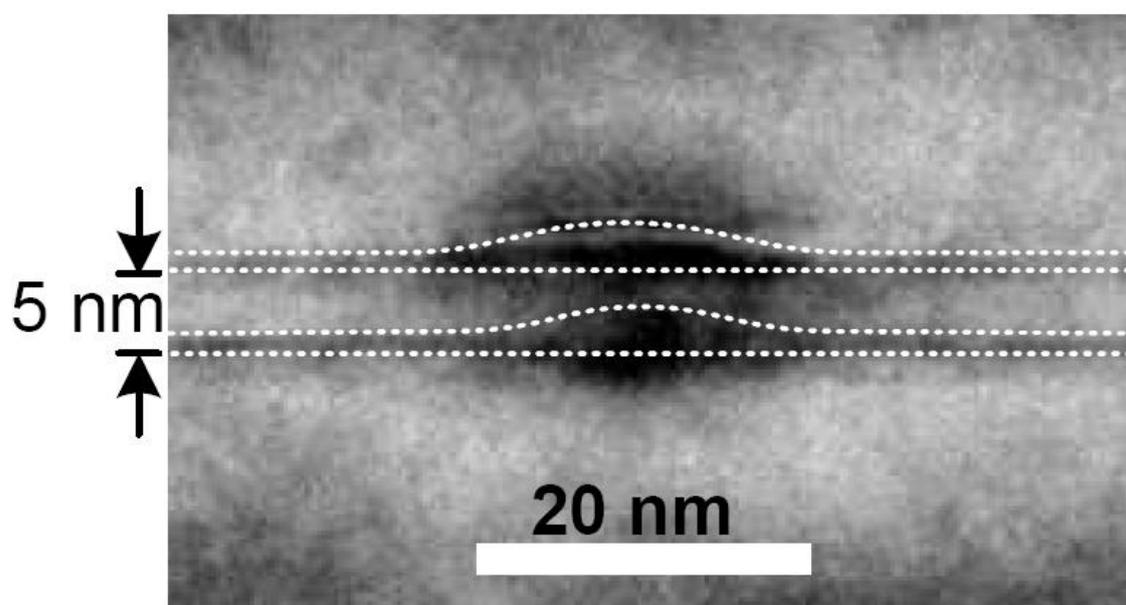


圖 2.1-2 單一砷化鎵垂直耦合量子點分子的 TEM 影像

雖然兩層量子點的成長條件完全一樣，但由於應力的緣故，上層的量子點會比下層的約略大一點。最後，為了偵測到單一量子點分子，我們在樣品上鍍上一層金屬鋁，用電子束微影系統製造約 $0.3\mu\text{m}$ 孔洞，透過顯微鏡將雷射光聚焦通過孔洞後，便可以在孔洞中激發單一量子點分子。

2.2 顯微光激螢光光譜量測系統

顯微光激螢光光譜量測系統如圖 2.2-1。雷射光先經過一片分光鏡後，穿透光打入功率計(power meter)後量測光強度，而反射光則經過物鏡聚焦在樣品上做激發光源。激發出的螢光由物鏡收集後，由光譜儀分光並以液氮冷卻的 Si-CCD 偵測光強度，整體對譜線的線寬解析度約為 $60 \mu\text{eV}$ 。藉由勞倫茲曲線來擬合觀察到的譜線，可以將譜線位置確定在 $10 \mu\text{eV}$ 以內。

另外在量測偏振方向分析的螢光光譜時，我們利用偏振晶體及半波片分析不同角度的偏振光。



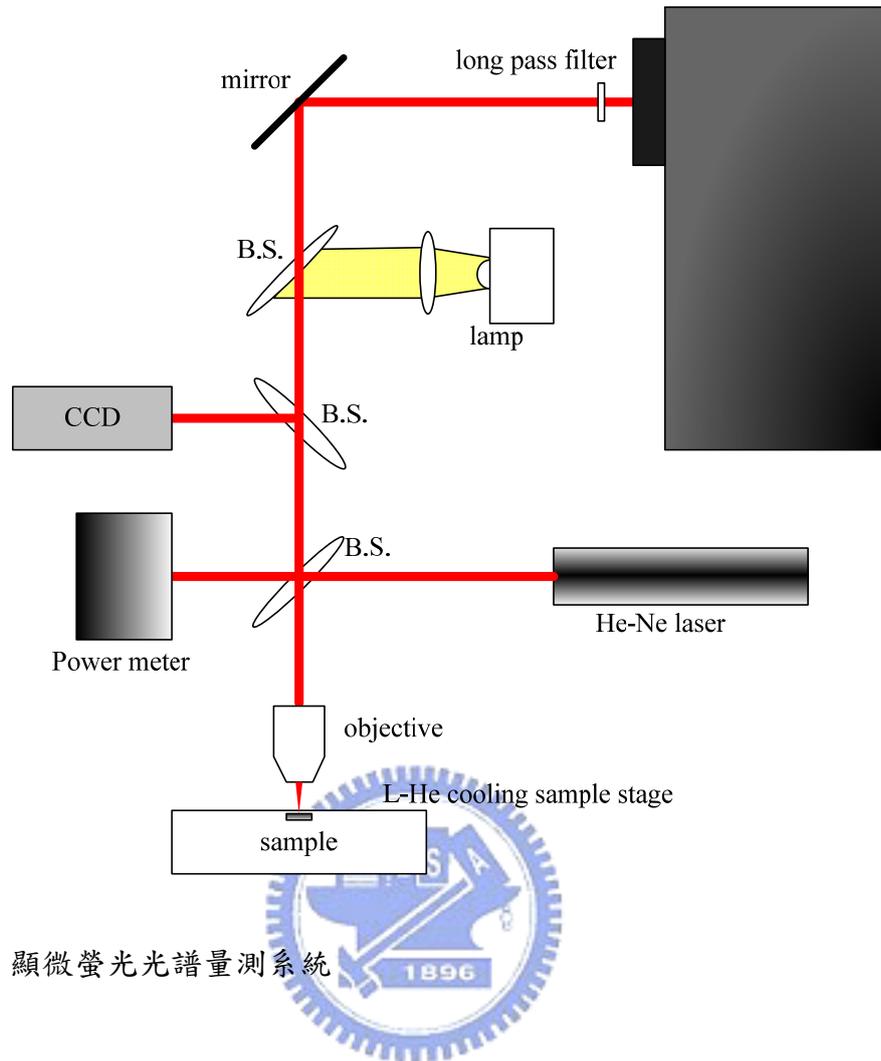


圖 2.2-1 顯微螢光光譜量測系統

2.3 時間解析光譜量測系統

將顯微光激螢光光譜量測系統的激發光源改成脈衝雷射，每個脈衝雷射打入樣品後，收集激發出的螢光，螢光經過 APD 偵測到後，送出一個電壓訊號，經過反向器後變成一個負的脈衝訊號，定義為計時開始的時間。另一方面，在入射雷射的光路上，放置一片光束檢樣器 (beam sampler)，反射約百分之二的光束至觸發二極體 (trigger diode)，轉換成相同於雷射頻率的脈衝訊號，定義為系統結束的時

間。將每一次開始到結束的時間差，積分後便得到時間解析螢光光譜。

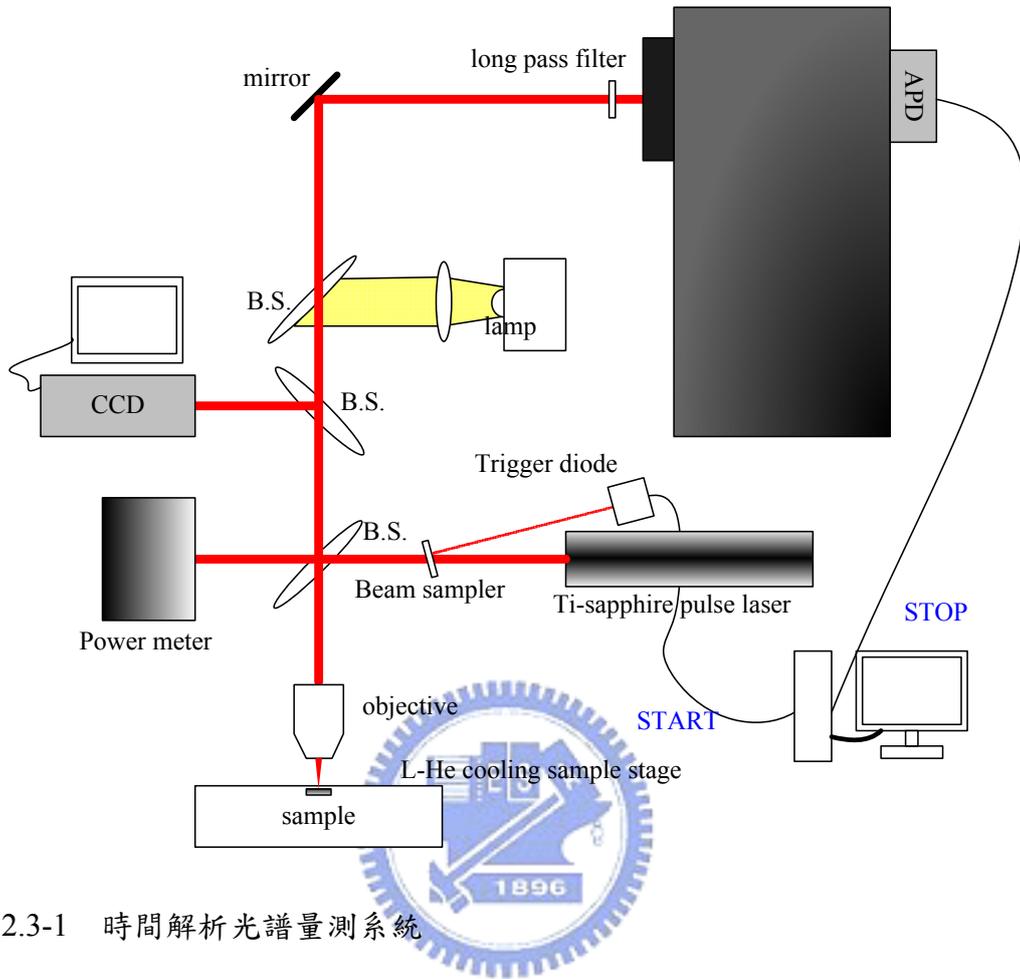


圖 2.3-1 時間解析光譜量測系統

第三章 結果與討論

實驗結果將分成兩部分討論。第一部分，是螢光光譜的辨認。我們利用顯微螢光光譜量測系統，觀察到多組單一量子點分子具有相似的譜線特徵。藉由改變功率和偏振方向分析，可分辨出直接單激子和間接單激子及雙激子。透過改變激發光的能量，也可進一步辨認出帶負電激子。第二部分，我們將描述量子點分子之間的交互作用。當溫度增加時，發現了直接單激子態和間接單激子態之間具有單一方向的載子轉換。為了解釋載子轉換的現象，我們提出了速率方程式模型來描述實驗結果，並判斷此一現象是熱活化的電洞穿隧效應。



3.1 量子點分子光激螢光光譜

為了瞭解樣品特性及量子點分子的基本性質，我們先針對沒有覆蓋鋁遮罩的量子點分子樣品量測其螢光光譜，如圖 3.1-1 所示。

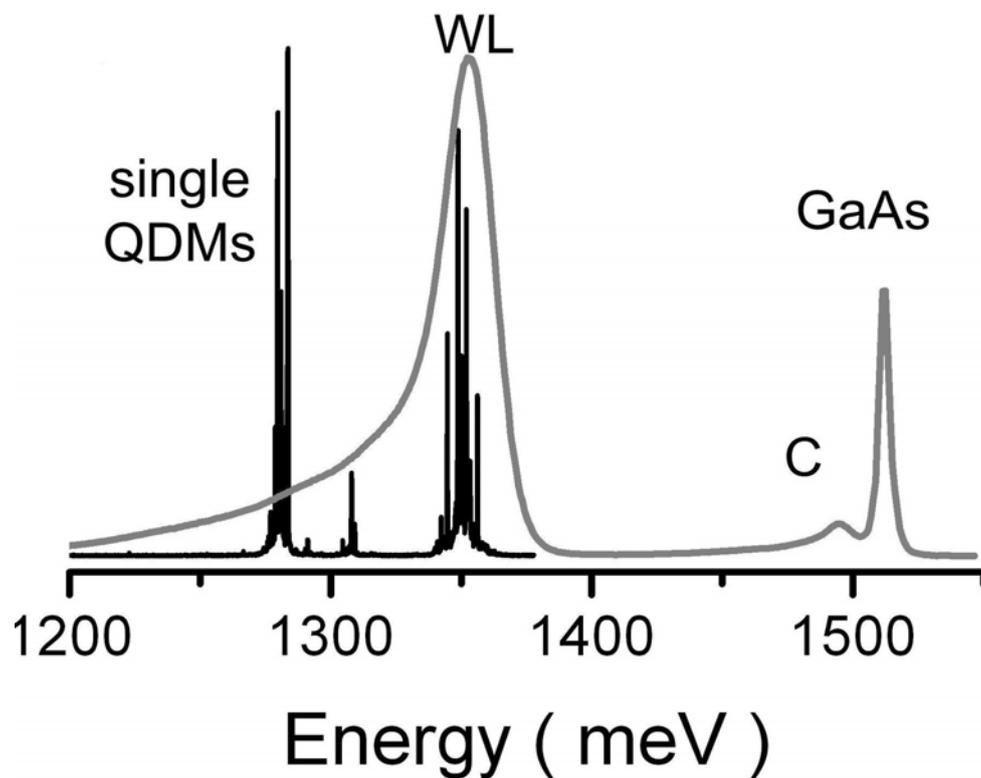
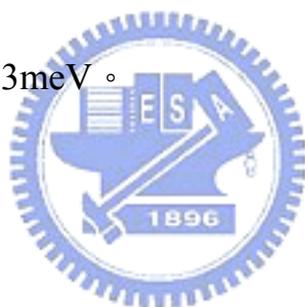


圖 3.1-1 灰線部分是群體量子點分子訊號，黑線部分是單一量子點分子訊號

在此光譜中，1.52eV 是砷化鎵(GaAs)能帶邊緣發光訊號，1.49eV 則是雜質發光訊號。此訊號是以有機金屬化學氣相沉積系統 (MOCVD) 成長過程中，常見的碳雜質殘留。1.35eV 是砷化銦鎵潤濕層的螢光訊號。因砷化銦鎵量子點分子的密度很低，其螢光訊號會混合在潤濕層的低能量端。我們利用鋁遮罩上直徑約 300 nm 的孔洞，透過顯微鏡將雷射光聚焦通過孔洞後，可以在孔洞中激發單一量子點分子，這部分已在實驗方法中詳細討論。典型的單一量子點分子的螢光訊號如圖 3.1-1 的黑線部分所示。在大約 1280meV 附近的數個

線寬很窄的譜線即為單一量子點分子的訊號，亦為本研究主要分析的訊號。透過量測不同孔洞，可找出一系列不同的單一量子點分子螢光訊號，進而比對之間的相似特徵。

圖 3.1-2 是以 He-Ne 雷射(1494meV)作激發光源，在低功率($2\mu W$)的激發條件下，四個不同量子點分子的譜線，分別標示為 QDM1 至 QDM4。可發現，不同的量子點分子均呈現出三個主要的譜線，分別標示為 X1、X2、X3。我們也發現在不同的量子點分子當中，X2 與 X1 的能量變異較大，介於 0.3-2meV 之間，而 X3 與 X1 的能量差異很小，約比 X1 低 $4\pm 0.13\text{meV}$ 。



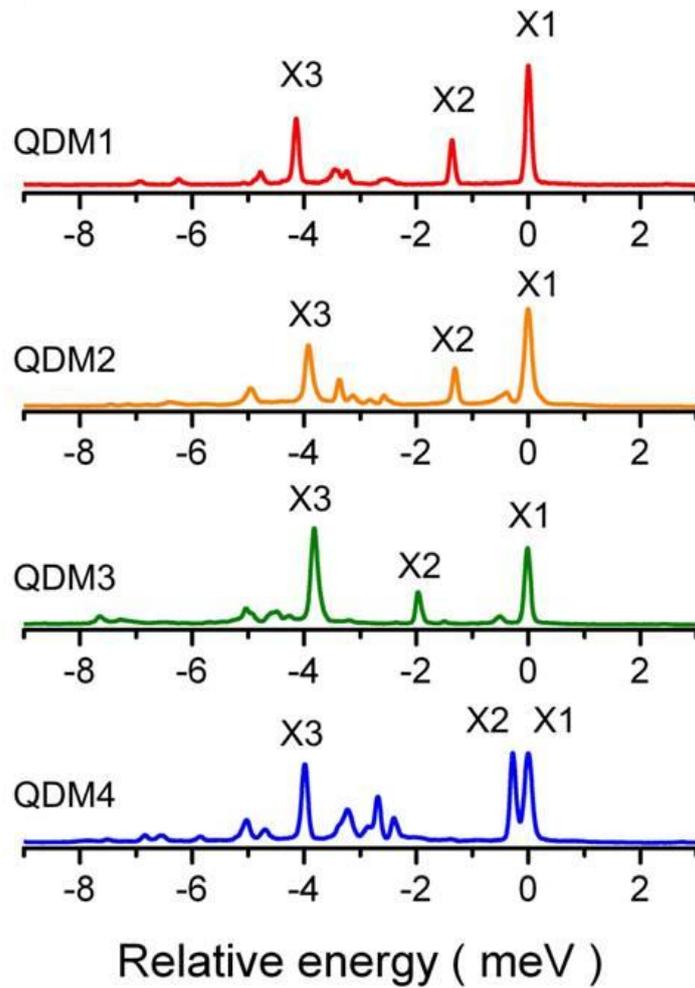


圖 3.1-2 不同單一量子點分子的螢光光譜訊號。我們使用相對於 X1 的能量來當作 X 軸，從 QDM1 至 QDM4 的 X1 能量分別為 1283.5，1285.3，1257.4，1283.8meV。

為了辨認這些譜線是屬於何種激子態，我們量測改變不同激發功率的顯微螢光光譜。在過去對量子點的譜線研究中，單一激子態的譜線強度會隨著激發功率增加而呈現線性成長，而雙激子態的強度則會隨著激發功率增加而呈平方關係；至於帶電荷激子態，其強度與激發

功率的關係一般認為介於線性與平方之間。如果發光強度對激發功率分別取對數作圖，則單一激子態斜率為 1，雙激子態斜率則為 2；至於帶電荷激子態斜率則通常在介於 1~2 之間。實驗結果如圖 3.1-3、3.1-4 所示。

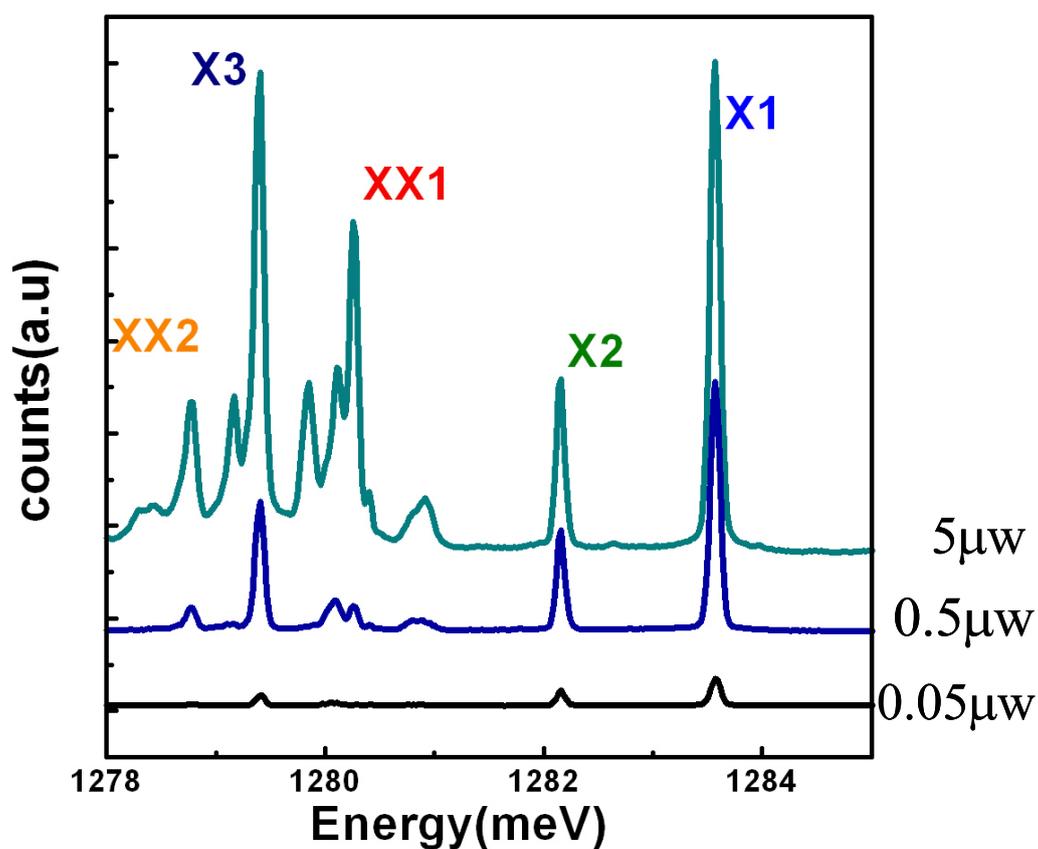


圖 3.1-3 三個不同的激發功率譜圖，隨著激發功率增加，可以觀察到雙激子態的形成

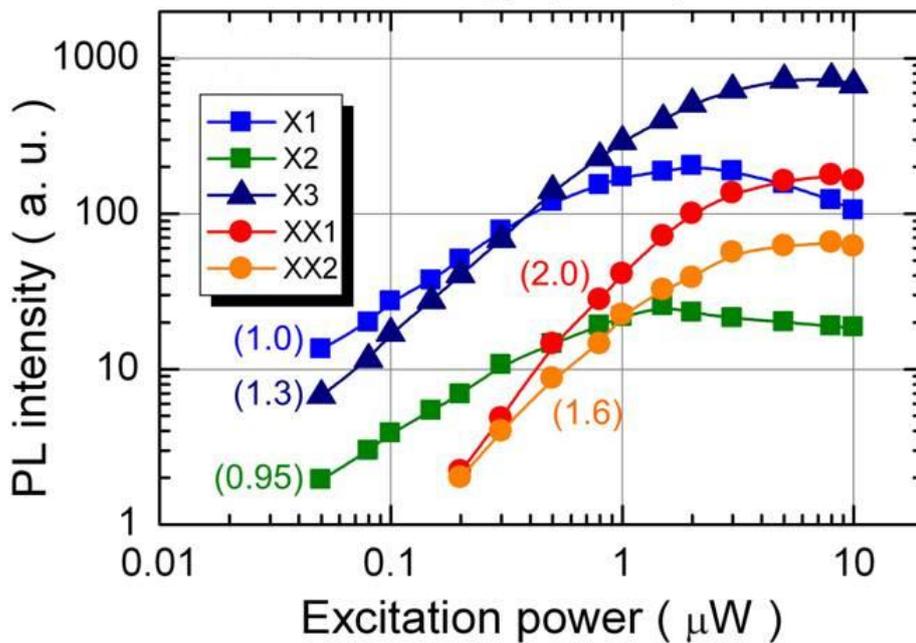


圖 3.1-4 PL 發光強度對激發功率分別取對數作圖。



隨著激發功率增加，原本三條主要譜線，逐漸顯示出其它譜線。我們針對這些譜線強度對激發功率作圖，可以發現隨激發功率增加，X1 跟 X2 的斜率近於 1，因此判定這兩條譜線屬於單一激子態的復合訊號。X3 的斜率略大於 1，因此認為它是屬於帶電激子的訊號。至於 XX1 跟 XX2 兩條譜線，其斜率分別為 2 跟 1.6，且在較高激發功率下才出現，因此認為這兩個訊號屬於雙激子態。

從譜線特徵得到 X1 跟 X2 之間的能量差距為 0.3meV 到 2meV，可推測它們並非來自於兩顆個別量子點的直接單一激子態。由 TEM 的橫截面影像得知，兩顆量子點的大小至少相差約 20%。根據簡單的

量子點能階估算，可以估計出兩量子點的基態能量至少會差數十個 meV，跟實驗結果不合。若為了分析這些譜線的來源，我們必須引入兩個量子點耦合的概念。當兩顆量子點距離越來越近的時候，電子及電洞的能階會有耦合的現象。兩顆量子點的電子或電洞會混成相同的能階，此時它們的波函數會有兩種最低的能量解：對稱和反對稱，如圖 3.1-5 所示。這兩種波函數會分別對應成兩種能態，為束縛態和反束縛態(bonding and antibonding state)，且束縛態的能量會低於反束縛態。由 TEM 可得兩顆量子點底部的距離只有 5 奈米，根據理論的計算，電子的穿隧耦合效應會很強，並且混成的束縛態和反束縛態能量差將達 50meV。然而，因為有效質量比較大及應力的關係，電洞在此距離下依然傾向獨立的量子態，使得兩個量子點的電洞能階只有數個 meV 的能量差[4]。所以我們推測，X1 和 X2 是處在同一個量子點的電子束縛態(bonding state)和處在不同量子點的相異電洞能階復合而形成的兩條譜線。若電子電洞對在同一顆量子點，我們稱其為直接單激子態;但若電子及電洞分別位於不同的量子點，則稱為間接單激子態。我們將樣品中各種激子態繪出如圖 3.1-6。

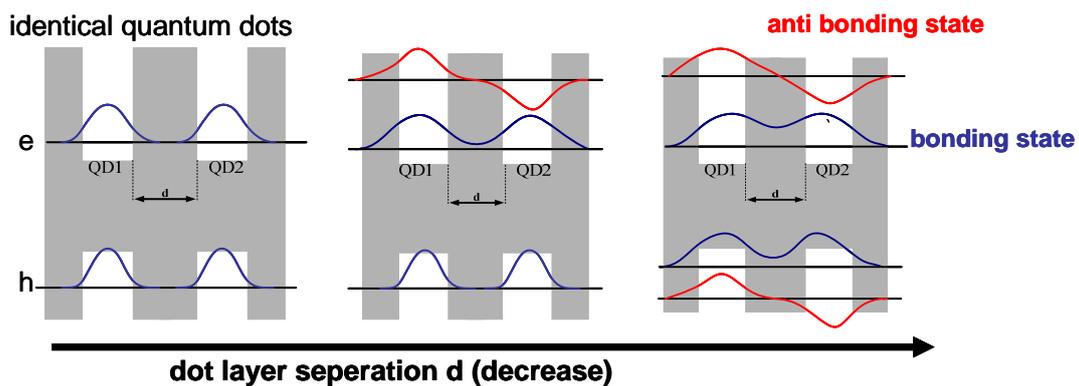


圖 3.1-5 兩個量子點中電子和電洞波函數隨著距離的靠近產生耦合的情形

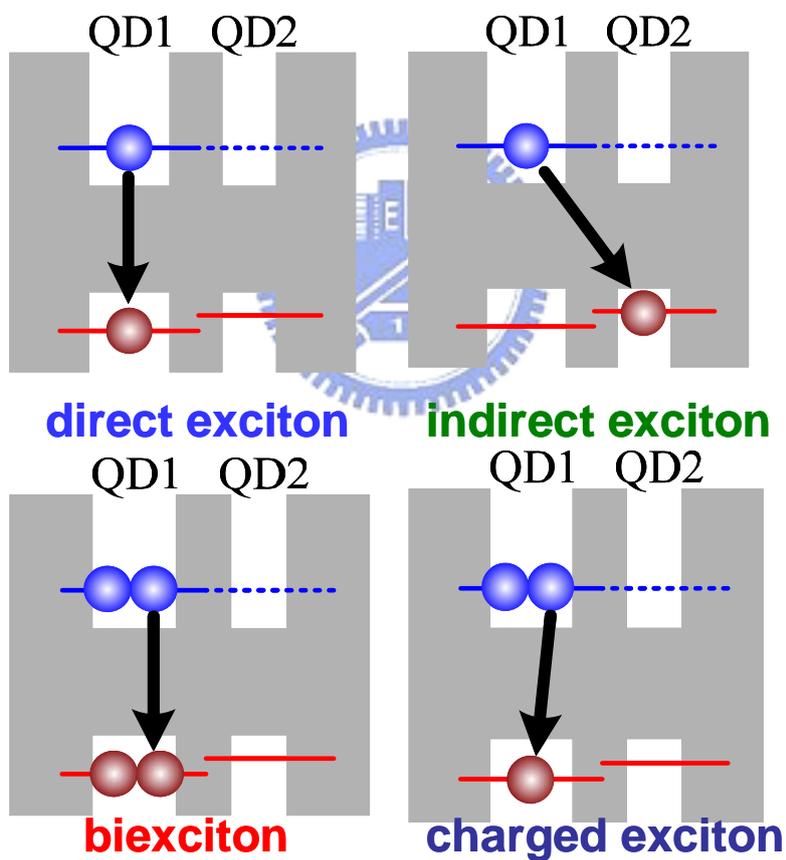


圖 3.1-6 樣品中主要的各種激子態

在量子點分子中，我們可以使用偏振方向分析顯微螢光光譜，藉由觀察不同偏振態的精細結構分裂(Fine-structure splitting)，來辨認何者為直接單激子態，何者為間接單激子態。在單量子點中，重電洞和電子形成的激子其總自旋角動量 M 由電子自旋($S = \pm\frac{1}{2}$)和重電洞自旋($J = \pm\frac{3}{2}$)組合而成，若以總自旋 M 來區分激子能態則可得四個簡併態： $|1\rangle$ ， $|-1\rangle$ ， $|2\rangle$ ， $|-2\rangle$ 。其中 $|\pm 1\rangle$ 會跟光子耦合而放出左旋或右旋的極化光，故當激子的 $M = \pm 1$ 時稱之為光激子，而 $M = \pm 2$ 時則為暗激子。若考慮電子和電洞的交換交互作用(electron-hole exchange interaction)時，光激子和暗激子之間會產生能量分裂 Δ_0 ，並且暗激子之間會混成 $|2\rangle \pm |-2\rangle$ 兩個不同能階的能態。當量子點的對稱性 $<C_{2V}$ 時，電子-電洞交互作用會造成光激子原本的左旋及右旋極化光，混成兩個互相垂直的線偏振態，分別為較高能量的 $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle)$ 和低能量的 $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle)$ 。這兩個光激子的混成態通常會沿著 $[110]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 兩個不同的晶軸方向發出線偏振光，其發光譜線的能量差異 Δ_1 則稱為精細結構分裂[5]，如圖 3.1-7。

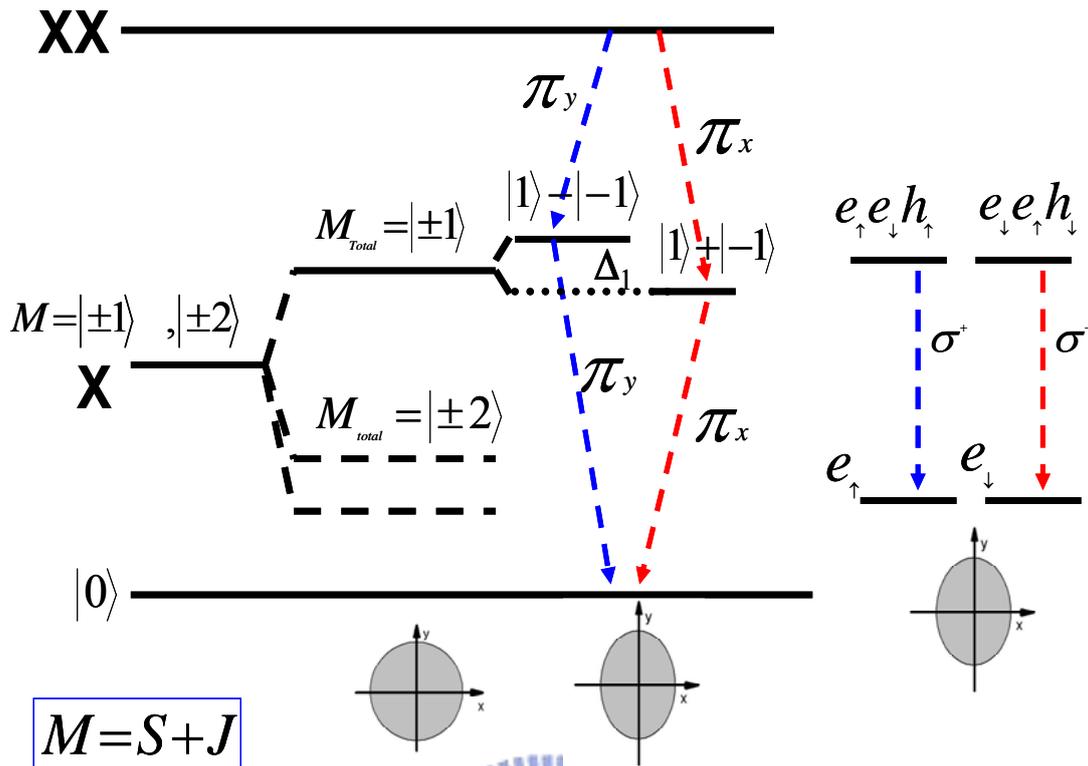


圖 3.1-7 左圖表示雙激子和單激子態因量子點的不對稱，電子電洞交互作用造成的細微結構分裂。右圖為帶負電激子態的能階圖

在 InAs 和 InGaAs 的單量子點中，激子態典型精細結構分裂大約為數十 μeV 至數百 μeV [6]，雙激子態由於電子及電洞的總自旋角動量為零，因此沒有精細結構分裂。然而，因雙激子態復合後會形成單激子態，故雙激子螢光的兩種正交線偏振分裂能量會與單激子態相同，但順序相反。

由於直接單激子態是電子和電洞被侷限在同一顆量子點，故表現出來的精細結構分裂應該接近單量子點。而電子-電洞交互作用正比於電子和電洞波函數重疊的程度，間接單激子態的精細結構分裂會顯

著降低，因為電子和電洞被侷限在不同顆量子點。透過細微結構分裂的差異，可以辨認直接和間接單激子態所發出的譜線。

圖3.1-8是我們的實驗結果， π_x 和 π_y 分別代表 $[110]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 方向的線偏振態。我們發現，X1表現出了 $30\mu\text{eV}$ 的細微結構分裂。XX1表現出相同於X1的細微結構分裂，但他們的順序相反，由此可以推斷XX1及X1是同一個量子點發出的螢光，為連續的直接雙激子及直接單激子態。但在所有的量子點中，X2都沒有觀察到細微結構分裂，依此判斷X2是量子點分子中不同量子點間的載子復合，即間接單激子態，若X2為帶正電荷激子態，由於其能量小於X1的關係，此帶電荷激子態的兩個電洞必然位於不同的量子點，這種激子態雖然電洞成對，但位在另一顆量子點的電洞自旋對整體影響很小，應該會表現出細微結構分裂，跟實驗結果不合，所以我們否定了這個可能性。X3沒有表現出細微結構的分裂，加上其斜率大於X2，是帶電荷激子態，因為成對的電子或電洞總角動量為零，造成激子的自旋角動量單由電洞或電子所提供[5][7]，因此不會有電子-電洞自旋耦合的交互作用，故不會觀察到細微精細結構分裂。

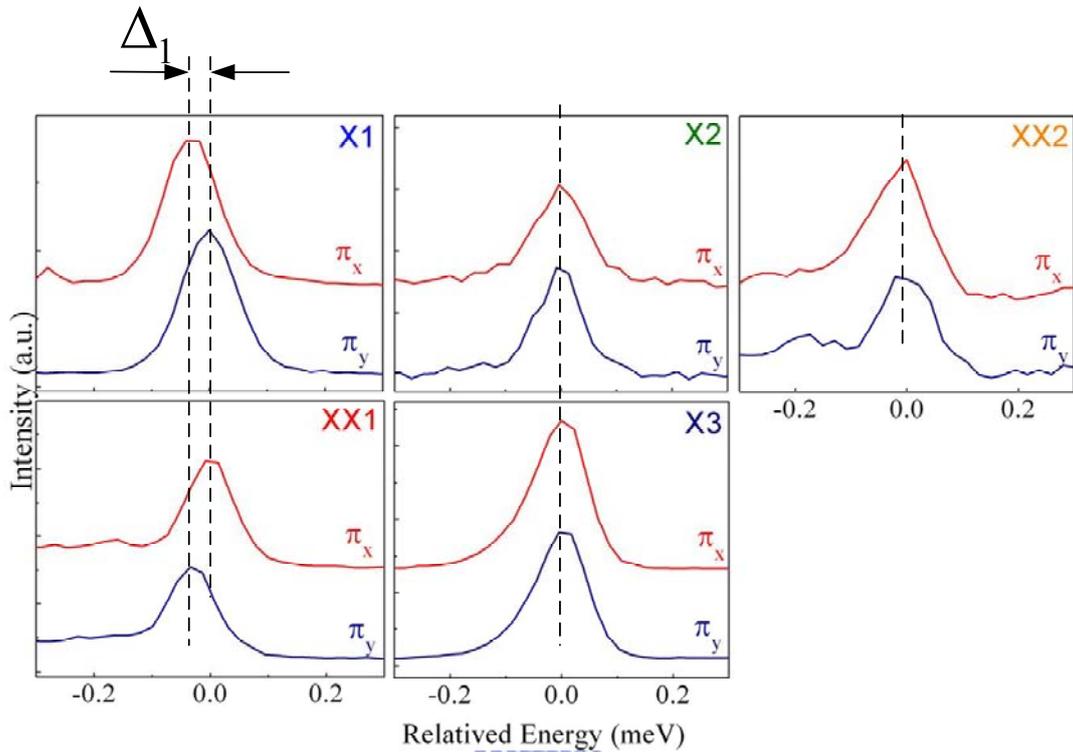


圖 3.1-8 各種激子態的偏振方向分析光譜

透過變激發能量的螢光光譜量測，可以判斷出帶電荷激子態X3

帶電荷的屬性。實驗結果如圖3.1-9。

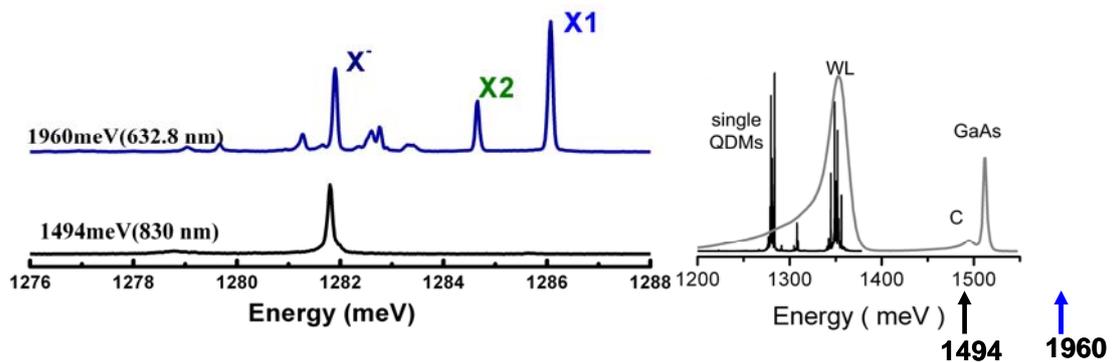


圖 3.1-9 不同激發能量的光激螢光光譜，在雷射激發能量跟碳雜質能階產生共振時，只會激發帶負電荷激子

低功率($2\mu W$)的激發條件下，當激發能量大於砷化鎵的能帶間隙時，可以觀察三條主要譜線，分別是直接單激子態 X1 和間接單激子態 X2 及帶電荷激子態 X3。當激發能量跟樣品裡殘留的碳雜質能階共振時，我們觀察到只有帶電荷激子態的譜線，藉此判斷它是單一帶負電荷激子態[8]。He-Ne 雷射的激發能量為 1960meV ，大於砷化鎵的能帶間隙，因此會在砷化鎵的能帶產生電子和電洞，而後被量子點捕捉住而成配對，形成電中性激子態或帶電荷激子態，如圖 3.1-10。由於樣品的量子點層十分靠近表面的關係，殘留的碳雜質會受到表面電場的影響而游離，這些游離的碳雜質會形成受體捕捉電洞，因此量子點的訊號傾向發出帶負電荷激子態的螢光。可以說，穩態時佔據量子點為何種能態的機率，跟潤濕層或砷化鎵產生的光激載子傳輸到量子點這一段的路徑有關。但若激發能量為 1494meV ，跟碳雜質共振的雷射容易在此產生電子電洞對，其中的電洞會被雜質所限制住，而為潤濕層提供了大量的自由電子。另一方面，潤濕層也會產生電子電洞對，故被量子點限制住的載子會非常傾向於帶負電荷激子態。所以此時觀察到的譜線，會以帶負電荷激子態為主。所以我們可以由改變雷射激發能量，來確定帶電荷激子態是否為帶負電激子態。

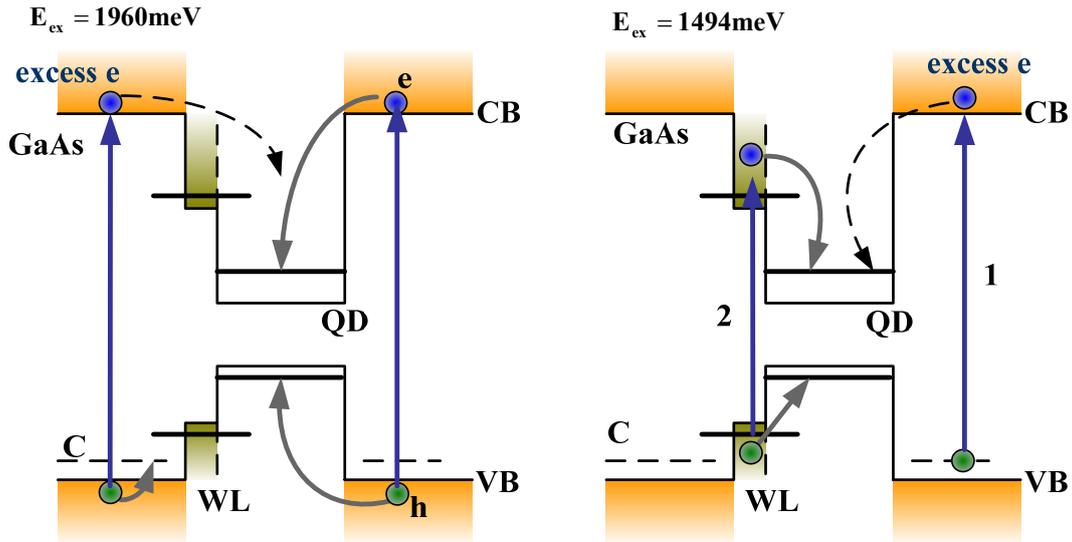


圖 3.1-10 在不同的雷射激發能量下，載子在量子點內部傳輸的情形

3.2 量子點分子的耦合交互作用

兩個量子點間的耦合交互作用，主要由電子或電洞的穿隧效應 (tunneling effect) 或是激子的偶極偶極交互作用 (dipole-dipole interaction) 所決定。當兩個形狀大小完全相同的量子點，其電子及電洞的能階相同，而產生共振導致耦合穿隧效應[9]，造成當量子點的間距為 5nm 時則會觀察到約 50meV 能量差的兩條譜線[10]。當系統是兩個非對稱的量子點，因為量子點的大小及所受應力的不同導致相異的能階[11][12]，使得耦合穿隧效應被抑制。但隨著量子點的間距縮短，相異的電子能階依然會耦合成束縛和反束縛態[4]，只是分布上會傾向集中在其中一顆量子點，但是電洞由於有效質量較大，其庫倫排斥力會讓其被侷限在不同的量子點，而無法發生量子穿隧[13]，

如圖 3.2-1。

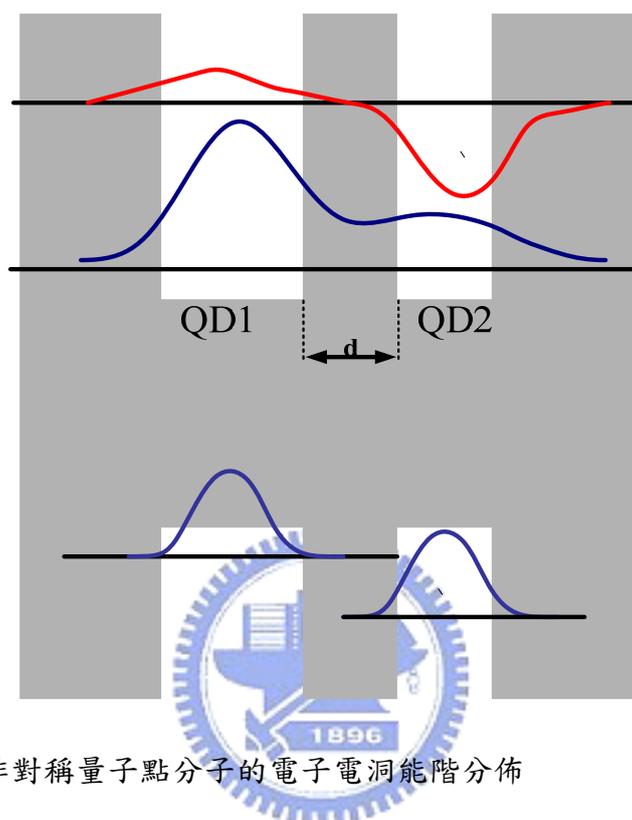


圖 3.2-1 非對稱量子點分子的電子電洞能階分佈

此時量子點分子的耦合可能會由激子的偶極-偶極交互作用主導，因為此交互作用對系統對稱性較不敏感。透過交互作用形成的載子轉換因為能階的不同，需要透過聲子的協助以滿足能量守衡。故兩相異量子點之間的能量轉換，可能由聲子協助的Förster能量轉移機制引起[14][15]，屬於偶極-偶極交互作用[16]，但也有可能由非共振的穿隧效應(nonresonant tunneling)產生[17][18][19]，如圖3.2-2。無論引起的機制為何，皆跟聲子有密切的關係。

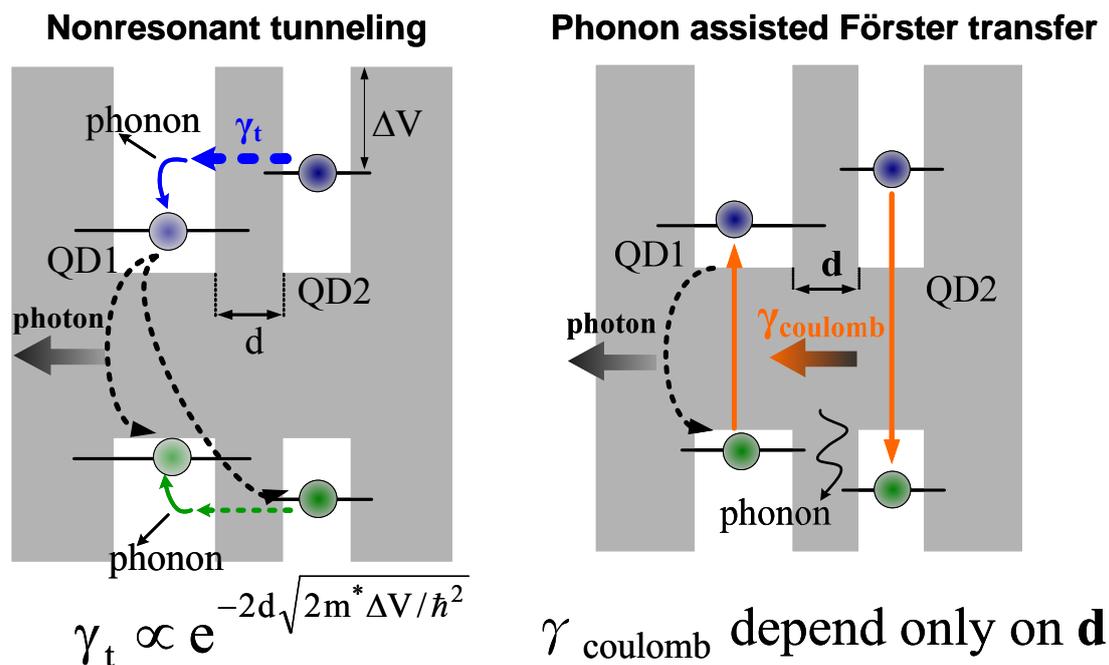


圖 3.2-2 非對稱量子點分子間主要的兩種交互作用

所以為了進一步觀察樣品中量子點分子內部耦合的情形，我對這幾組量子點分子進行變溫螢光光譜量測。將溫度從 4.3K 升到 26K，我們觀察到兩個主要現象：第一是譜線能量的紅移，在低功率激發下的三條主要譜線，都表現出約 0.4meV 極小的能量平移，這是因為溫度增加而使得樣品晶格變大所引起，如圖 3.2-3。

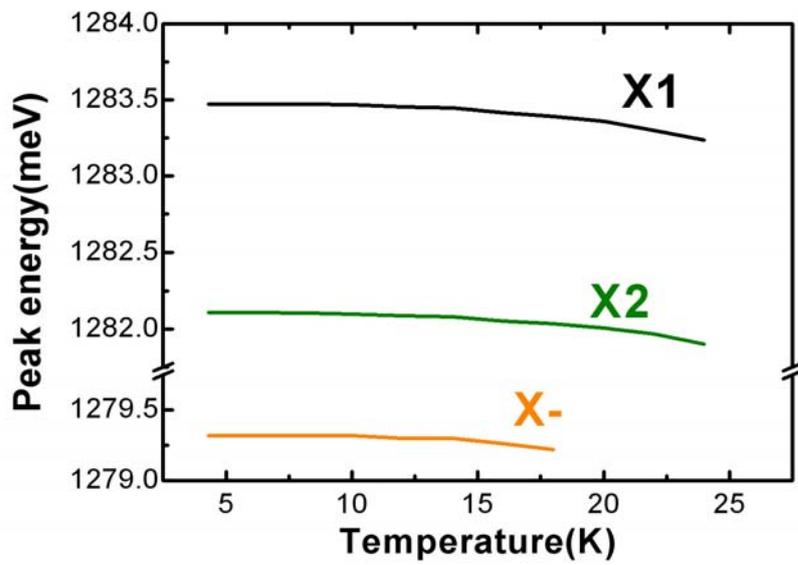


圖 3.2-3 溫度從 4K 升至 26K，低功率激發條件下的三條主要譜線，溫度對譜線能量作圖

第二是譜線強度的消長，我們發現，低溫的情形下大部份的量子點 X1 強度均大於 X2，隨著溫度的增加，X1 和 X- 的光強度減小，X2 的光強度增加，如圖 3.2-4。

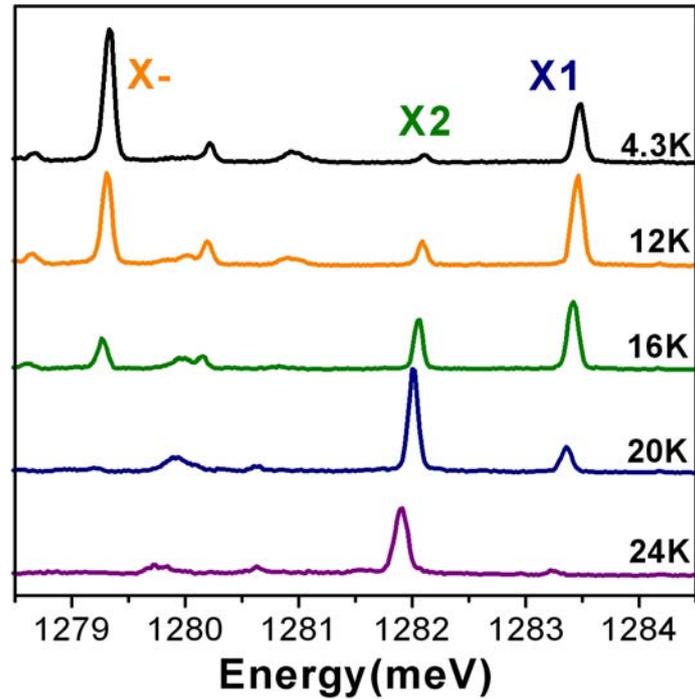


圖 3.2-4 隨著溫度升高，低功率激發下三個主要譜線強度消長的情形

能量轉換通常發生在具有同樣電子電洞數量的激子態之間，故我們專注在直接單激子和間接單激子的光強度變化。將X1跟X2的強度 I_1 跟 I_2 用兩者的相對強度 $\frac{I_1(I_2)}{I_1+I_2}$ 表示，對溫度做圖可以得到如圖 3.2-5(a)，可以發現幾乎所有的量子點分子都有一樣的情形，隨溫度的變化高能量的X1強度 I_1 減少，低能量X2光強度 I_2 增加，不一樣的是 $I_1=I_2$ 也就是兩條曲線交叉時的溫度。如圖3.2-5(b)。因為X1和X2的電洞在不同的量子點中，光強度的互換代表著這兩個鄰近的量子點之間有單一方向的電洞轉換。此單一方向的轉換過程會受到溫度的增加而活化，並且跟X1的復合速率有相同的數量級。

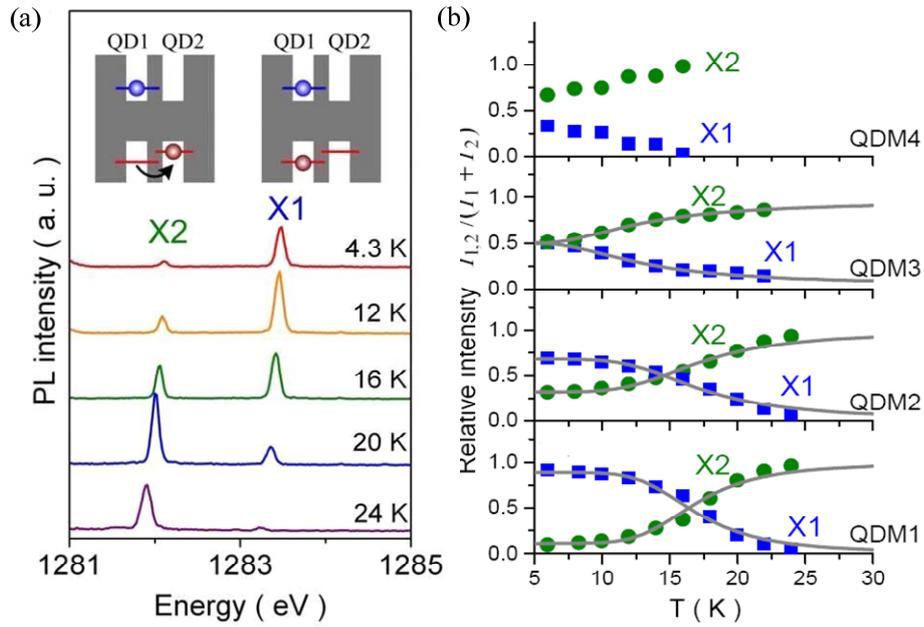


圖 3.2-5 (a)直接和間接單激子態隨溫度增加的能量轉換情形。(b)將 X1 和 X2 的相對強度對溫度作圖，虛線部分為擬合的結果

為了更進一步了解這一段熱活化轉換的過程，我們建立了一個簡單的速率方程式模型，模擬兩個能態之中量子點分子間的能量轉換，如圖3.2-6。

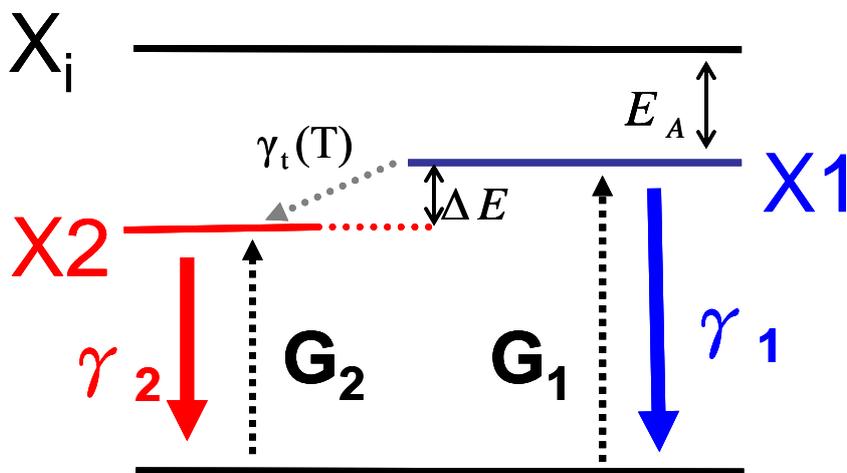
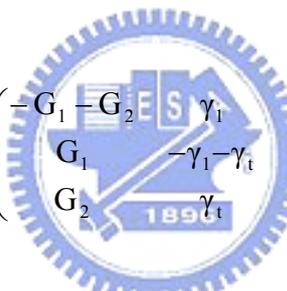


圖 3.2-6 簡化的速率方程式模型

這個模型考慮了聲子幫助的能量轉換：電子電洞對由基態(ground state)以 G_1 和 G_2 的速率激發到 X1 或 X2 的能態，或者可以說是樣品受到雷射激發時，激子以 G_1 和 G_2 的機率佔據量子點分子，形成 X1 和 X2 能態，然後各自以 γ_1 和 γ_2 的速率放出螢光而衰減。X1 激子態在聲子的幫助下，以機率 $\gamma_t(T) = \gamma_0 e^{\frac{-E_A}{k_B T}}$ 將載子傳輸到 X2 成為 X2 激子態， E_A 為此熱活化能量轉換的活化能。

為了更清楚的表達速率方程式，我們使用矩陣的形式表示

$$\frac{\partial \vec{n}}{\partial t} = M \cdot \vec{n} :$$



$$\begin{pmatrix} \dot{n}_0 \\ \dot{n}_1 \\ \dot{n}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -G_1 - G_2 & \gamma_1 & \gamma_2 \\ G_1 & -\gamma_1 - \gamma_t & 0 \\ G_2 & \gamma_t & -\gamma_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} n_0 \\ n_1 \\ n_2 \end{pmatrix}$$

$G_1(G_2)$ 和 $\gamma_1(\gamma_2)$ 是 X1(X2)產生的速率和複合的速率， n_0, n_1, n_2 是量子點內的電子電洞對處於基態、X1、X2 激子態的機率。解此速率方程式的穩態解我們得到

$$\frac{I_1}{I_1 + I_2} = \frac{G_1}{(G_1 + G_2) \left(1 + \frac{\gamma_0}{\gamma_1} e^{\frac{-E_A}{k_B T}} \right)}$$

而 X2 的相對強度為 $1 - \frac{I_1}{I_1 + I_2}$ ，於是在擬合實驗數據時，我們只需要調

變三個參數： $(\frac{\gamma_0}{\gamma_1})$ ， E_A ， $(\frac{G_1}{G_2})$ ，此時我們以 γ_1 為一個速率單位，來做

模型中各項速率變數的調變。在低溫時 $(\frac{\gamma_0}{\gamma_1})e^{\frac{-E_A}{k_B T}}$ 這一項趨近於零，故

X1 和 X2 光強度的比值決定了 $(\frac{G_1}{G_2})$ ，接著我們不斷調變 $(\frac{\gamma_0}{\gamma_1})$ 和 E_A ，來

對變溫的實驗數據取得最好的擬合值，它們影響了 X1 和 X2 相對強

度相等時的溫度和光強度隨溫度改變的斜率。如圖 3.2-5，使用這個

模型，可以得到相當好的擬合結果。而 QDM4 由於 X1 和 X2 的能量

差只有 0.3meV，其電洞能階存在直接的耦合穿隧，在低溫下已經

$I_2 > I_1$ ，於是沒有辦法用這個模型擬合出隨溫度增加光強度交叉的情

形。



將不同量子點分子的擬合值和 X1 跟 X2 的能量差 列出如表

3.2-1。

QDMs	ΔE_{12} (meV)	E_A (meV)	γ_0/γ_1	g_1/g_2
1	1.36	10	920	8.0
2	1.30	7.5	140	2.1
3	1.97	3.4	17	1.0
4	0.27	-	-	-
5	1.88	5.0	60	2.1

表 3.2-1 不同量子點直接和間接單激子態的能量差 ΔE_{12} 和使用速率方程式獲得的各項擬合值

我們發現到 $(\frac{\gamma_0}{\gamma_1})$ ， E_A ， $(\frac{G_1}{G_2})$ 這三個擬合值跟 ΔE_{12} 沒有任何關係，

但是 $(\frac{\gamma_0}{\gamma_1})$ 卻會隨著 E_A 有近似對數的關聯。我們用電洞在兩個量子點間

的穿隧效應來解釋這個現象：在量子點分子中，其中一顆量子點內的電洞受熱而活化，穿隧至另一顆量子點，如圖 3.2-7。

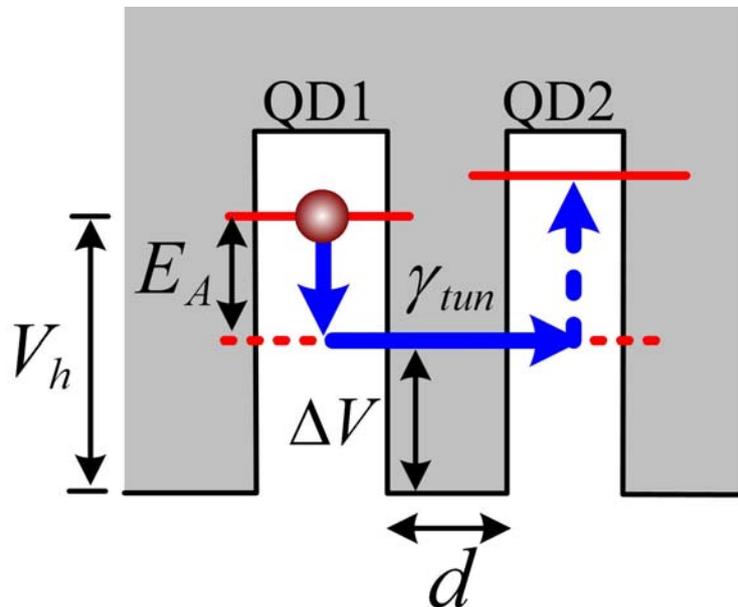


圖 3.2-7 熱活化的電洞穿隧效應

在量子點1的電洞先透過吸收聲子能量 E_A 而佔據一高能量的中間態，其速率為 $\gamma_{\text{absorption}}$ ，然後透過量子穿隧效應到第二個量子點，其速率為 $\gamma_{\text{tunneling}}$ ，再快速釋放聲子形成間接單激子態 X2[20]，速率為 γ_{emission} 。因為 E_A 的範圍介於 5~10meV(表 3.2-1)，而 InGaAs 量子點中，光學聲子(optical phonon)的能量介於 30~40meV，故激子態是透過多個聲學聲子(multiple acoustic phonon)來達到能量的吸收[14]與釋放[20][21]。

若將兩個量子點中間的砷化鎵層想像為一個有限的方形位障 V_h ，厚度 d ，且波函數的能量 $E_A < V_h$ ，可以得到波函數量子穿隧的機

率，將其近似可以得到

$$\gamma_{\text{tunneling}} \propto e^{-2d\sqrt{(2m_h^*\Delta V/\hbar^2)}}$$

在這裡 $\Delta V = V_h - E_A$ ，也就是說 $\gamma_{\text{tunneling}}$ 會隨著位障厚度 d 和位障高度 ΔV 的減少，而有對數的成長。這表示當量子點內的電洞因為熱效應而處於一個高能量的中間態的同時，也降低了電洞的量子穿隧效應所需要跨過的能障，於是兩個量子點間的電洞轉換會被熱能所增強。更量化的來說，在這一段的過程中，我們考慮隨溫度變化的電洞傳輸速率的倒數為電洞經過這三段這能量轉換過程所需時間：

$$1/\gamma_t(T) = 1/(\gamma_{\text{absorption}} \times \gamma_{\text{tunneling}}) + 1/\gamma_{\text{emission}}$$

右式中的第一個部份為量子點一的電洞吸收聲子且經過量子穿隧至量子點二所需的時間，第二部分為量子點二的高能態釋放聲子到 X2 態的時間，因為這一段是非常快速的過程，故我們可以將其忽略。

於是我們得到

$$\gamma_t(T) = \gamma_{\text{absorption}} \times \gamma_{\text{tunneling}} = \gamma_0 e^{\frac{-E_A}{k_B T}}$$

$\gamma_{\text{absorption}}$ 為量子點一吸收聲子的速率，其值正比於 $e^{\frac{-E_A}{k_B T}}$ ，可以推斷

$\gamma_{\text{tunneling}} \propto \gamma_0$ 。因為 $\gamma_{\text{tunneling}} \propto e^{-2d\sqrt{(2m_h^*\Delta V/\hbar^2)}}$ ，可以得到 $\log(\gamma_0) \propto \sqrt{\Delta V}$ 。

$\Delta V = V_h - E_A$ ，因為潤濕層和量子點的發光訊號能量差為 70meV，量子點侷限住電洞或電子位能井的比值為 $V_h : V_e = 3:7$ [22][23][24]，所以我們

將 V_h 設為 20meV。將擬合值 $(\frac{\gamma_0}{\gamma_1})$ 取對數對 $\sqrt{\Delta V}$ 做圖，可以得到如圖

3.2-8。

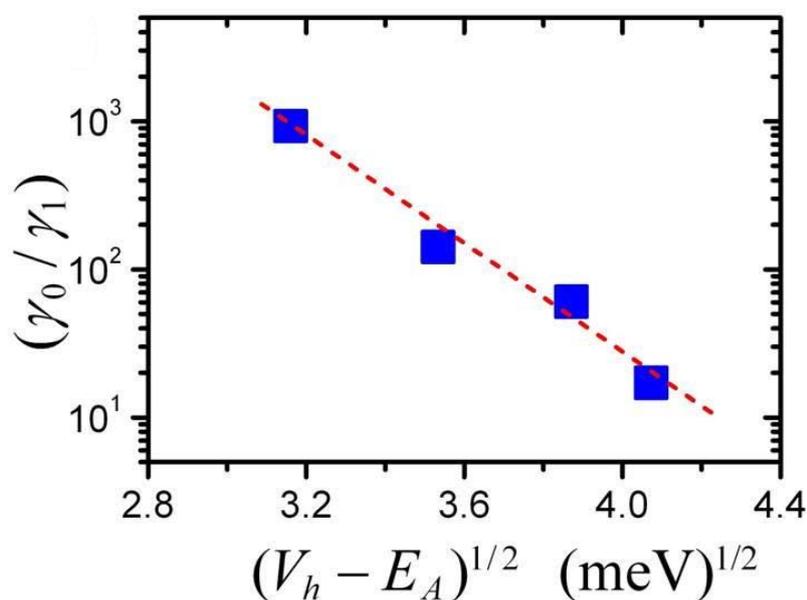


圖 3.2-8 不同量子點的擬合值 $(\frac{\gamma_0}{\gamma_1})$ 取對數對 $\sqrt{V_h - E_A}$ 做圖

我們發現， $(\frac{\gamma_0}{\gamma_1})$ 取對數後和 $\sqrt{\Delta V}$ 有相當好的線性關係，合乎我們之前討論的情形，這證實了主導兩個量子點之間的能量轉換形式為單一方向的熱活化電洞穿隧效應，而並非電洞的直接穿隧或偶極-偶極Förster能量轉移機制。

在我們樣品中偶極-偶極交互作用受到壓抑的原因，是我們的量子點分子的大小相差約20%，所以兩個量子點中的直接單激子會有很大的能量差。如果是透過透過聲子協助的Förster能量轉移機制：如量子點一的X1激子先透過吸收聲子到一高能量態，跟量子點二的p殼層生共振，透過庫倫作用的偶極-偶極能量交換機制，將量子點一的激

子轉換到量子點二，再快速的釋放至X2激子態，這樣的能量轉換機制的速率取決於 ΔE_{12} 和偶極-偶極交換作用的強度，而偶極-偶極交換作用的強度應該只跟兩個量子點的間距d有關，不會觀察到 $(\frac{\gamma_0}{\gamma_1})$ 取對數後和 $\sqrt{\Delta V}$ 的線性關係。

我們的結果對於控制兩個量子點間的耦合情形有很重要的意義。在已知的成果中，利用外加電場的調變來控制兩個量子點的耦合，已經有很多成功的例子[12]，但是我們的結果顯示，即使兩個量子點的電洞能階相差很多，當溫度增加，電洞的熱活化穿隧效應會提供量子點分子之間耦合的另外一種途徑，特別是在高溫的時候，這個效應會使得用電場調變來控制量子點耦合失去預期的效果。

3.3 變溫變功率螢光光譜量測及時間解析光譜量測

為了進一步觀察量子點間熱活化的電洞穿隧效應對量子點耦合的影響，我們對樣品作變溫變功率螢光光譜量測，實驗結果如圖3.3-1。

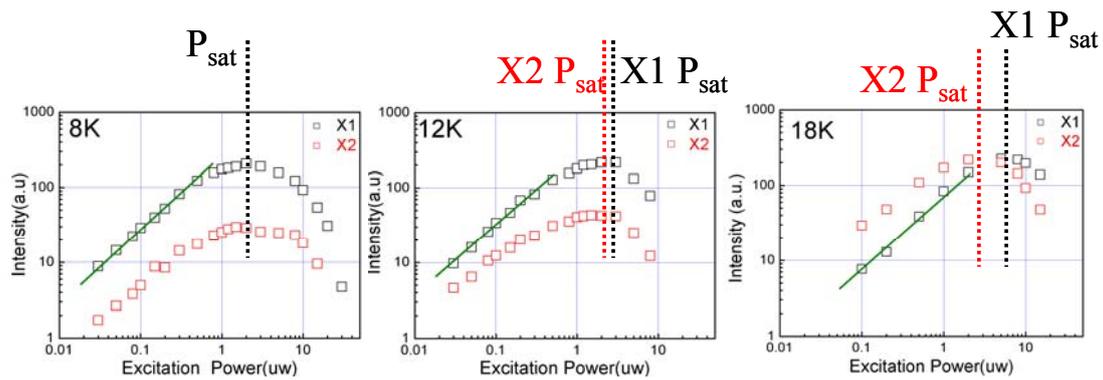


圖 3.3-1 三個不同的溫度下，直接和間接單激子態光強度對變激發功率分別取對數後的圖形

觀察直接和間接單激子態在三個溫度的光強度對變激發功率的作圖，可以發現在低溫的譜圖中，直接單激子態 X1 和間接單激子態 X2 具有相同的飽和功率，在 8K 的時候大約是 $2\mu\text{W}$ 。而隨溫度的增加，X1 和 X2 的飽和功率也跟著上升，在 18K 的時候大約是 $6\mu\text{W}$ 左右，這是因為溫度升高使得激子態的非輻射複合的速率增加，需要更大的功率激發出更多的電子電洞對才能讓量子點達到飽和功率。但值得注意的是，在高溫時 X2 跟 X1 的飽和功率並不相同，於是我們用 X2/X1 對激發功率來作圖以更清楚的觀察這個現象，如圖 3.3-2。

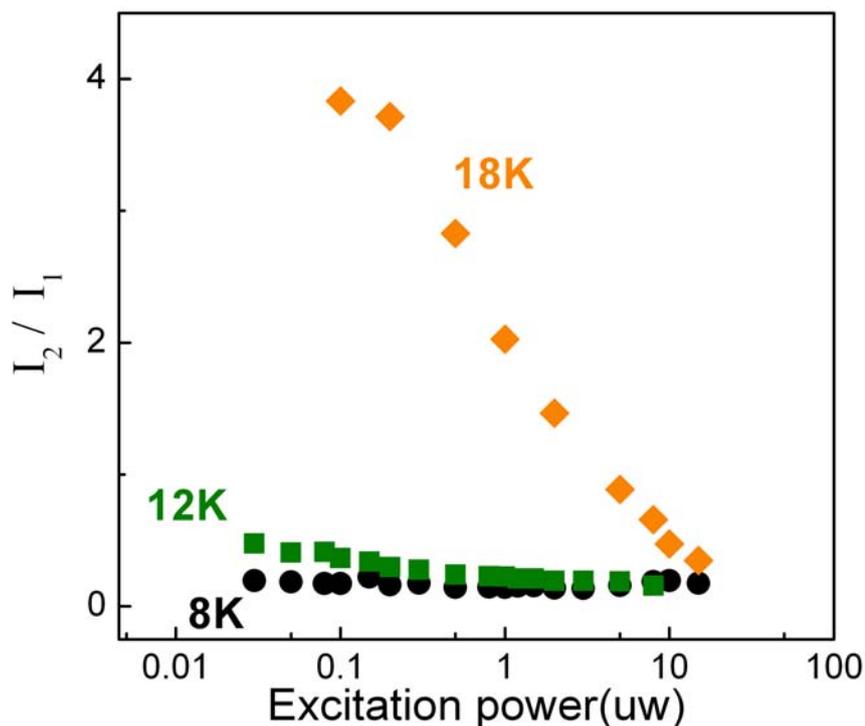


圖 3.3-2 三個不同溫度下，X2 和 X1 的光強度比值 I_2/I_1 對激發功率取對數繪圖

在低溫的情形下，兩個激子態的光強度比值隨激發功率的增加並不會改變，但隨著溫度升高，在低功率激發條件下，激子態受熱活化的電洞穿隧效應而使得 X_2/X_1 的比值變大，但這個值卻會隨著激發功率的增加而減少。在 18K，我們甚至看到了隨激發功率的增加 X_1 和 X_2 強度互換的情形。這是因為在高溫時， X_1 激子受熱活化的電洞穿隧效應而成為 X_2 激子，相較於低溫的情形 X_2 有兩種產生的途徑，同樣的激發功率下會有較大的產生機率，可以推斷 X_2 會比 X_1 還要早形成雙激子態而達到飽和功率， X_2 接近飽和時 X_1 經穿隧效應轉換成 X_2 的機率就會降低，於是在高激發強度的 X_2/X_1 會接近低

溫的情況，故從這個實驗可以更進一步確定 X1 和 X2 之間確實存在熱活化的電洞穿隧效應。這部分理論模型的擬合可以參考附錄 B。

熱活化的電洞穿隧效應屬於載子的動態行為，為了進一步描述溫度增加時 X1 和 X2 機率的分布隨時間變化的情形，我們對樣品做了時間解析光譜量測。因為時間解析光譜的量測需要使用脈衝雷射，所以我們這時候改用脈衝半寬約為 120fs 的 Ti-Sapphire 脈衝雷射做激發光源，為了達到大於砷化鎵能帶間隙的激發能量，我們將波長為 800nm 雷射，倍頻後為 400nm 波長的倍頻光作激發光源。實驗結果如圖 3.3-3。



圖 3.3-3(a)是用脈衝雷射激發下，QDM1 不同溫度的光激螢光譜線。我們發現到在增溫的過程中，X1 相對於 X2 的光強度比值跟使用連續光的 He-Ne 雷射做激發時不一樣，強度相等時的溫度點在 7K 左右，但依然存在著譜線之間的消長，也就是說它們同樣表現出熱活化的電洞穿隧效應。在脈衝光的激發下，短時間內激發的功率密度很大，以及量子點內部的各激子態的機率分布是處於隨時間變化的非穩態，而使得同一個溫度下，連續光和脈衝光激發的 X1 和 X2 相對強度跟用連續光激發時不同。圖 3.3-3(b)是不同溫度下，X1 和 X2 這兩條譜線的時間解析光譜。我們發現到，X1 和 X2 都表現出約 1ns 的半衰期(decay time)，且半衰期並不隨溫度的變化而改變。由於時間

解析光譜直接反映了激子態佔據量子點的機率分佈隨時間變化的情形，變溫過程中半衰期不變而光強度改變，這代表著激子態佔據量子點分子的機率確實因為溫度的不同而有消長。但從現有的模型中我們無法擬合出一樣的結果(附錄 C)，代表模型仍然有更進一步修正的空間。

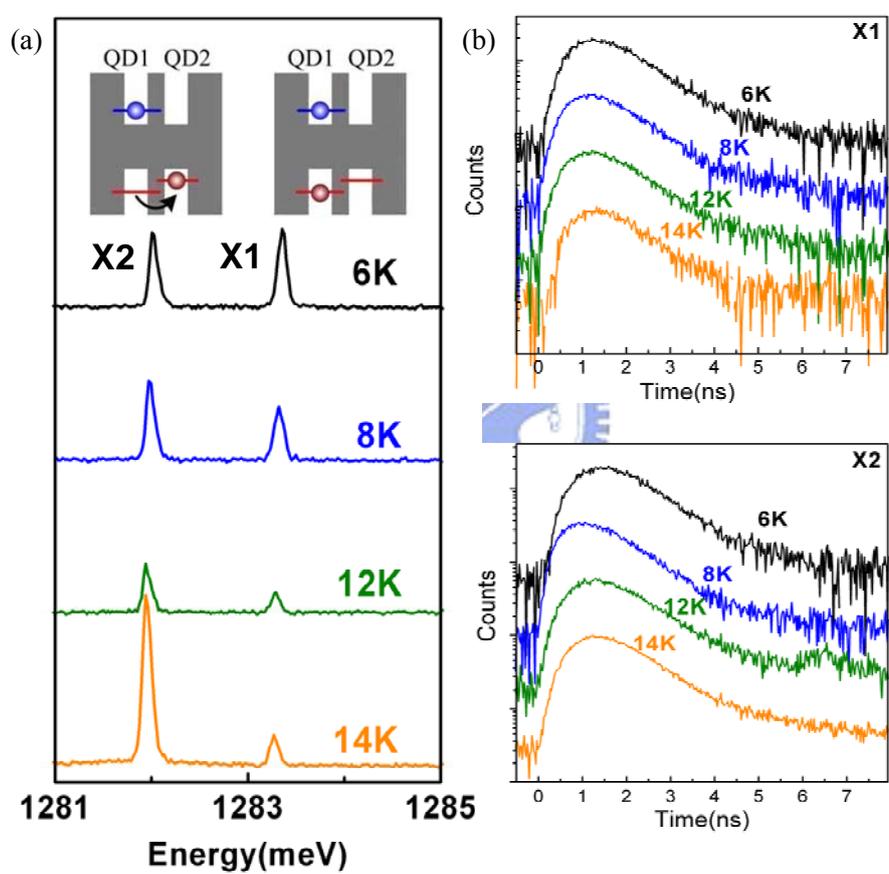


圖 3.3-3 (a)在脈衝雷射激發下，隨溫度變化的光激螢光光譜(b)直接和間接單激子態的時間解析光譜

第四章 結論

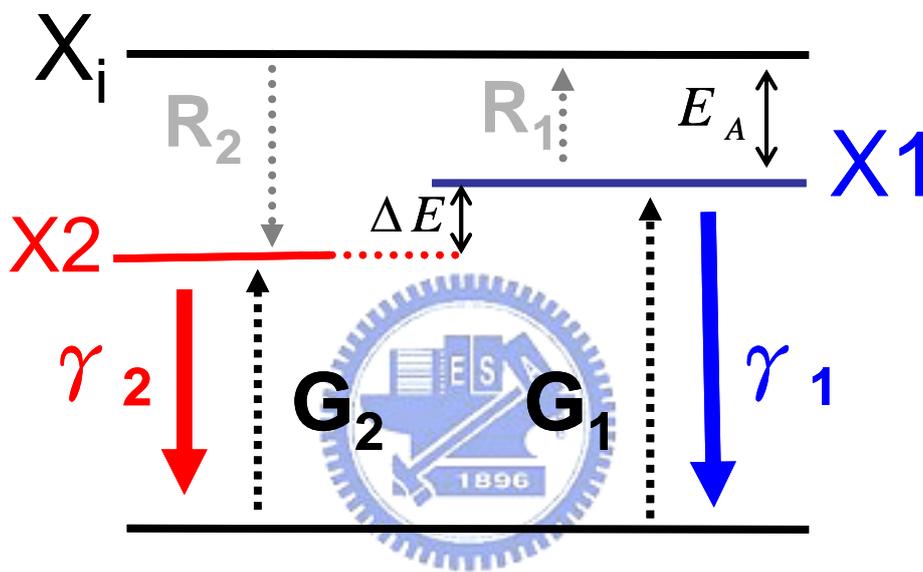
我們利用顯微螢光光譜量測系統，觀察到多組單一量子點分子具有相似的譜線特徵。藉由改變功率和偏振方向分析，觀察到某些譜線具有細微結構分裂，可分辨出直接單激子和間接單激子及雙激子。透過改變激發光的能量，也可進一步辨認出帶負電激子。

當溫度增加時，發現了直接單激子態和間接單激子態之間具有單一方向的載子轉換。為了解釋載子轉換的現象，我們提出了速率方程式模型來描述實驗結果，並且由不同量子點模擬後的參數，判斷出此載子轉換是源自是熱活化的電洞穿隧效應，而並非是直接的穿隧偶合或聲子協助的偶極-偶極 Förster 能量轉移機制，此效應可以在高溫時控制電洞能階的耦合。

經過不同溫度的變功率螢光量測，發現高溫下譜線強度比值會隨著激發功率而改變，因此我們可以得到此熱活化的電洞穿隧效應的輔助證據，由時間解析光譜量測結果，得到激子態的半衰期不隨溫度改變，代表著激子態佔據量子點分子的機率確實因為溫度的不同而有消長。

附錄A

在本論文中考慮能量轉換的模型，是一個經過合理簡化的圖像，原本的模型我們考慮了聲子的吸收及放射，並排除了電洞能階的直接耦合穿隧，如附圖A-1。



附圖 A-1 更詳盡的模擬量子點分子間之能量的轉換速率方程式模型

因為能量轉換是由高能量譜線 X_1 隨溫度增加轉換到低能量譜線 X_2 ，若為 X_1 和 X_2 電洞能態的直接耦合，那由於聲子瓶頸效應在量子點能階差為0.3-2meV時並不明顯的關係[25][26][27]，在低溫的情形下 X_1 會藉由聲子的釋放轉換到 X_2 能態，而使得 $I_1 < I_2$ ，在實驗中只有電洞能階差為0.3meV的QDM4表現出這種行為，其餘量子點分子在低溫下均為 $I_1 > I_2$ 。也就是說，當兩個量子點間距大於4nm，電洞能階 < 1 meV時，會發生典型的電洞的直接耦合穿隧[27]。但在樣品大部分的情形

中，因為不對稱造成的電洞能階的差距大於1meV，電洞的直接耦合穿隧會被壓抑。由於不考慮電洞的直接耦合穿隧，推斷X1之上有一個中間態Xi(intermediate state)。X1激子先透過吸收聲子而佔據此高能量的中間態，吸收聲子的速率為 $R_1 = \gamma_0 N_{ph}(T)$, $N_{ph}(T) = e^{\frac{-E_A}{k_B T}}$ ，然後過某種能量轉換機制和聲子的快速釋放，釋放聲子的速率為 $R_2 = \gamma_0 (N_{ph}(T) + 1)$ ，形成X2激子態，此即為熱活化的單一方向能量轉換。在這一段過程中，如果電洞能階並沒有離的很遠，那直接電洞穿隧也會提供一小部分的量子點間的能量轉換速率，但這個效應只會改變低溫時X1和X2的強度比，不包含在我們考慮的熱活化的能量轉換速率裡面。判斷為單一方向的理由如下：實驗上發現到當溫度越來高，X1完全消失並且只剩X2的螢光，若為雙向的聲子吸收與釋放，即Xi在釋放聲子的過程中也會回到X1能態，X2激子也會吸收聲子而到Xi能階，聲子的佔據係數為 $N_{ph}(T) = e^{\frac{-(E_A + \Delta E)}{k_B T}}$ 我們知道X1和X2的能量差為0.3~2meV，那麼此能量差並不足以讓X1和X2的光強度因為聲子的關係隨著溫度的增加產生如此大的強度比。也就是說在雙向的吸收與釋放中，若 ΔE_{12} 為2meV，20K時 I_2/I_1 的比值約為1.4，更高溫時則接近1.1，因為在聲子的佔據係數 $N_{ph}(T) = e^{\frac{-(E_A + \Delta E)}{k_B T}}$ 中，在溫度越大時X1和X2的能量差 ΔE 的影響會越小，兩個激子態的吸收或放射聲子的機率相同，造成兩個激子態放光強度接近一樣，跟實驗結果不合，故

在模型中，我們考慮熱活化的單一方向能量轉換。值得注意的是，因為是在低激發功率的條件下，所以模型中我們並不考慮雙激子態的影響。

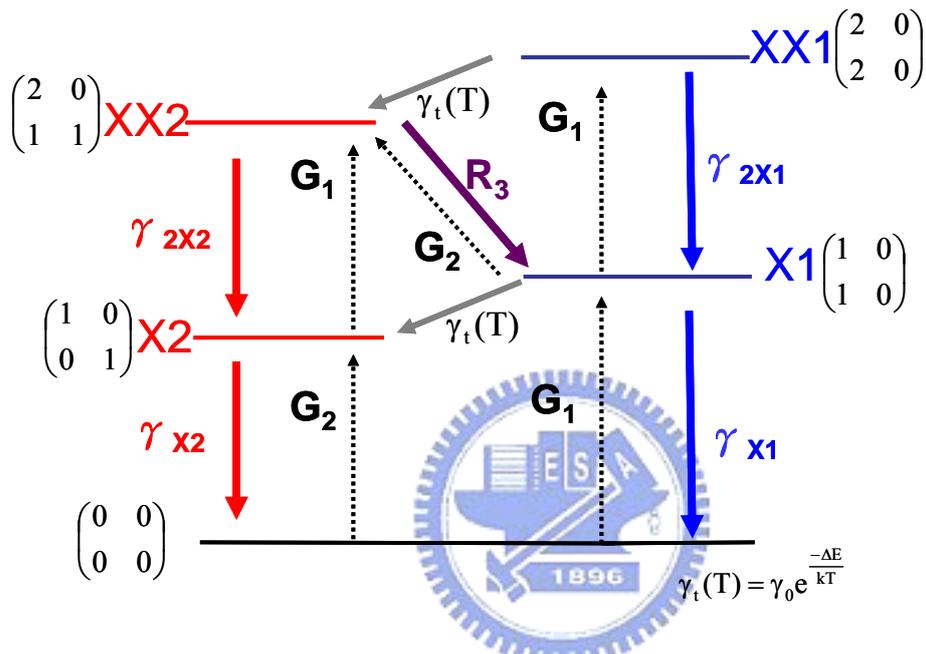
根據這個模型，可以寫出四個速率方程式：

$$\begin{cases} \frac{\partial n_0}{\partial t} = -(G_1 + G_2)n_0 + \gamma_1 n_1 + \gamma_2 n_2 \\ \frac{\partial n_1}{\partial t} = G_1 n_0 - (\gamma_1 + R_1)n_1 \\ \frac{\partial n_2}{\partial t} = G_2 n_0 - \gamma_2 n_2 + R_2 n_3 \\ \frac{\partial n_3}{\partial t} = R_1 n_1 - R_2 n_3 \end{cases}$$

在方程組中， n_0, n_1, n_2, n_3 分別為在某一時刻 t ，載子處於基態，X1 激子態，X2 激子態，中間態的機率。解此方程組時，我們關心的是穩態解，即載子處於各種能態的機率不隨時間改變，因為此時樣品的發光強度不隨時間改變。在求穩態解時，我們可以發現到，因為中間態不隨時間改變，在 Δt 的時間內，X1 激子態因為聲子作用而佔據高能量中間態的激子數量，會等同於此高能量中間態經某種能量轉換機制後再“快速”釋放聲子而處於 X2 激子態的數量，所以激子態轉換的速率由 X1 吸收聲子的速率乘上某一數值所決定 $\gamma_i(T) = \gamma_0 e^{\frac{-E_A}{k_B T}}$ ，於是我們可以將此模型化簡成一更簡單的形式，為一開始談到的模型圖 3.2-6。

附錄B

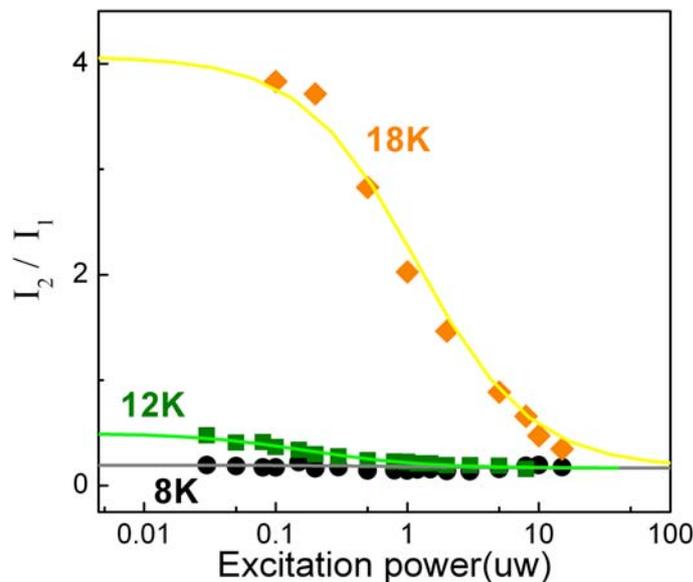
在模擬變溫邊功率螢光光譜結果上，我們可以用先前的模型，再加上雙激子態的能階，來擬合這個實驗結果，如附圖 B-1。



附圖 B-1 考慮雙激子態的速率方程式模型

為了更清楚的表示各種不同的激子態，我們用 $\begin{pmatrix} e_1 & e_2 \\ h_1 & h_2 \end{pmatrix}$ 的形式表達， e_1 表示在第一個量子點的電子數， h_1 表示在第一個量子點的電洞數，依此類推。直接單激子態 X1 的雙激子態為 XX1，由之前偏振方向分析光譜可以確定這個能階的形式為 $\begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 2 & 0 \end{pmatrix}$ ，X2 的雙激子態有兩種，分別是 $\begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 1 & 1 \end{pmatrix}$ 和 $\begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 0 & 2 \end{pmatrix}$ ，由於 $\begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 0 & 2 \end{pmatrix}$ 為兩個電洞同在第二顆量子點，因為電洞之間的庫倫作用力較大，判斷 $\begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 1 & 1 \end{pmatrix}$ 應該會先形成，為

了簡化我們的模型，所以先考慮 $\begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 1 & 1 \end{pmatrix}$ 為雙激子態 XX2。XX1 $\begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 2 & 0 \end{pmatrix}$ 存在熱活化電洞穿隧效應 $\gamma_i(T)$ ，使得 XX1 轉換為 XX2 $\begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 1 & 1 \end{pmatrix}$ 。XX2 有兩種電子電洞復合機制，分別是在同一顆量子點間的復合，速率為 R_{2X2} ，和不同顆量子點間的復合，速率為 R_3 ，復合後分別形成 X2 和 X1 單激子態。模擬的結果如圖 B-2 的線條所示。我們可以確定這個模型因為 X1 和 X2 之間有 $\gamma_i(T)$ 的轉換速率，而表現出 X2 相對於 X1 飽和功率變小的行為，使得 X1 穿隧到 X2 的機率降低，於是在高激發強度的 X2/X1 會接近低溫的情況。如果將 $\gamma_i(T)$ 從模型中忽略，便不會出現這個現象。但由於在這個模型中有太多需要調變的參數，沒有辦法確定定量表示每一個的數值。



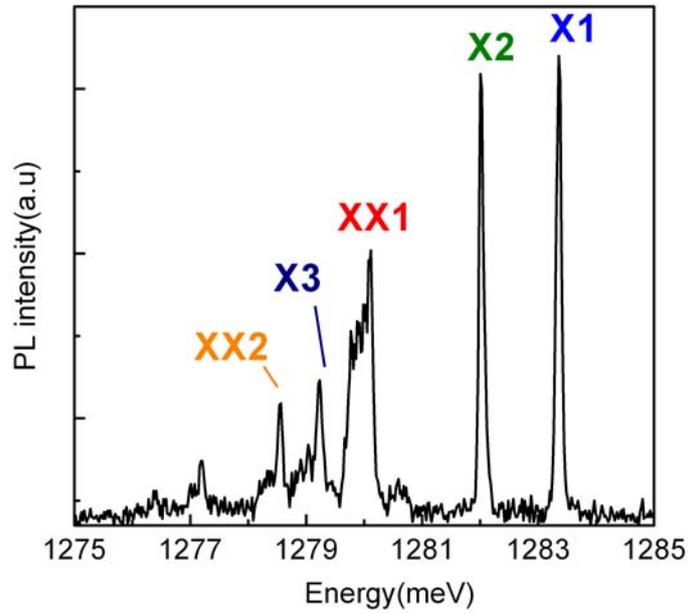
附圖 B-2 模擬直接和間接單激子態三個不同溫度下的激發強度對光強度作圖

附錄C

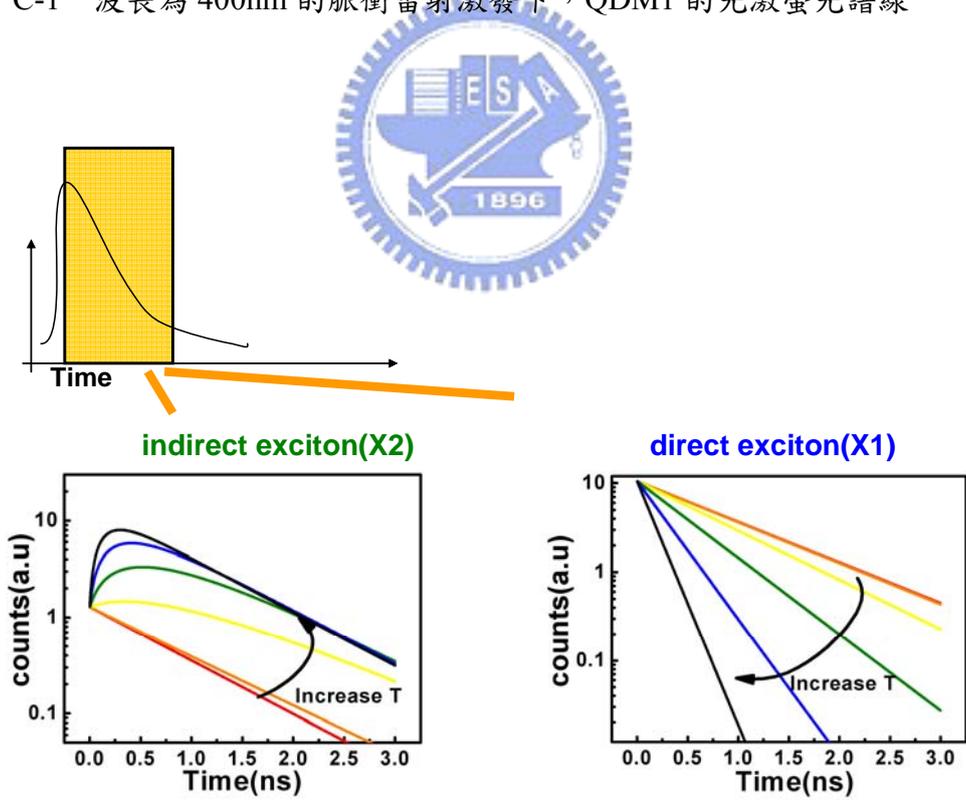
在時間解析光譜中，由於脈衝光的功率密度很大，故雙激子態的影響不能忽略，故我們嘗試用考慮雙激子態的速率方程式模型來模擬實驗結果，如圖附 C-1 所示。而模擬結果如附圖 C-2。

時間解析光譜直接反應了佔據量子點的激子態機率隨時間衰減的情形，在模擬的情形中，低溫情況下的時間解析光譜表現的行為即為兩個激子態原本的半衰期，但由於溫度的增加，而使得 X1 激子態會受到熱活化電洞穿隧效應的影響，X1 的電洞穿隧到另一個量子點，成為 X2 激子態，故機率分佈隨時間快速的變小，半衰期越來越短，相反的，X2 由於得到 X1 轉換過來的激子，所以半衰期越來越長，時間解析光譜中出現峰值的時間會向後移，但是當溫度高到一個程度，X1 在很短的時間內便透過熱活化的電洞穿隧效應轉成 X2 激子態，故在觀察 X2 激子態隨時間的衰減時，半衰期會跟低溫時相同均表現出 X2 原本的衰減，但達到峰值的時間會約略向後移。

模擬的情形不能反映我們的實驗結果，代表這個模型可能還不夠完備。在模型中我們只考慮的基態 X1 和 X2 激子態，XX1 和 XX2 雙激子態這五個能階的影響，但是在脈衝的高功率密度下，還有很多我們無法確認的譜線被激發出來，這些譜線都可能跟單激子態有其他的交互作用而使得半衰期不會因為溫度的影響而被改變。



附圖 C-1 波長為 400nm 的脈衝雷射激發下，QDM1 的光激螢光譜線



附圖 C-2 直接和間接單激子態模擬出的時間解析光譜

參考文獻

- [1] G. Burkard, and D. Loss, Phys. Rev. Lett 59, 2070 (1999).
- [2] D. Loss and D. P. DiVincenzo, Phys. Rev. A 57, 120 (1998).
- [3] G.Ortner, M. Bayer, Y. Lyanda-Geller, T. L. Reinecke, A. Kress, J. P. Reithmaier, and A. Forchel, Phys. Rev. Lett 94, 157401 (2005).
- [4] G. Bester, J. Shumway, and A. Zunger, Phys. Rev. Lett. 93, 047401 (2004).
- [5] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff, and F. Schäfer, Phys. Rev. B 65, 195315 (2002).
- [6] R.Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Pötschke, U. W. Pohl, and D. Bimberg, Phys. Rev. Lett 95, 257402 (2005).
- [7] A. Högele, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, R. J. Warburton, D. Gerardot, and P. M. Petroff, Phys. Rev. Lett. 93, 217401 (2004).
- [8] W.-H. Chang, H.-S. Chang, W.-Y. Chen, T. M. Hsu, T.-P. Hsieh, J.-I. Chyi, and N.-T. Yeh, Phys. Rev. B 72, 233302 (2005).
- [9] G. Burkard, G. Seelig, and D. Loss, Phys. Rev. B 62, 2581 (2000), F. Troiani, U. Hohenester, and E. Molinari, Phys. Rev. B 65, 161301 (2002).
- [10] M. Bayer, P. Hawrylak, K. Hinzer, S. Fafard, M. Korkusinski, Z. R. Wasilewski, O. Stern and A. Forchell, Science 291, 451 (2001)
- [11] G. Ortner, I. Yugova, G. Baldassarri Höger von Högersthal, Larionov, H. Kurtze, D. R. Yakovlev, and M. Bayer, Phys. Rev. B 71, 125335 (2005).
- [12] E. A. Stinaff, M. Scheibner, A. S. Bracker, I. V. Ponomarev, V. L. Korenev, M. E. Ware, M. F. Doty, T. L. Reinecke, and Gammon¹, Science 311, 636 (2006).
- [13] G. Bester, A. Zunger, and J. Shumway, Phys Rev. B 71, 075325 (2005).
- [14] A. O. Govorov, Phys. Rev. B 71, 155323 (2005).
- [15] B. D. Gerardot, S. Strauf, M. J. A. de Dood, A. M. Bychkov, Badolato, K. Hennessy, E. L. Hu, D. Bouwmeester, and P. M. Petroff, Phys. Rev. Lett. 95, 137403 (2005).
- [16] A. O. Govorov , Phys. Rev. B 68, 075315 (2003).
- [17] A. Tackeuchi, T. Kuroda, K. Mase, Y. Nakata, and N. Yokoyama, Phys. Rev. B 62, 1568 (2000).
- [18] Yu. I. Mazur, Zh. M. Wang, G. G. Tarasov, G.J. Salamo, J. W. Tomm, V. Talalaev, and H. Kissel, Phys. Rev. B 71, 235313 (2005).
- [19] M. Reischle, G. J. Beirne, R. Robach, M. Jetter, H. Schweizer, and P. Michler, Phys. Rev. B 76, 085338 (2007).
- [20] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, and Y. Arakawa, Phys. Rev. Lett 82, 4114 (1999).

- [21] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, M. Schwab, and M. Bayer, Phys. Rev. Lett. 91, 267401 (2003).
- [22] J.-Y. Marzin, M. N. Charasse, B. Sermage, Phys. Rev. B 31, 8298 (1985).
- [23] B. Jogai, Appl. Phys. Lett. 59, 1329 (1991).
- [24] J.-P. Reithmaier, R. Höger, H. Riechert, A. Heberle, G. Abstreiter, and G. Weimann, Appl. Phys. Lett. 56, 536 (1990).
- [25] R. Heitz, A. Kalburge, Q. Xie, M. Grundmann, P. Chen, Hoffmann, A. Madhukar, and D. Bimberg, Phys. Rev. B 57, 9050 (1998).
- [26] G. Ortner, R. Oulton, H. Kurtze, M. Schwab, D. R. Yakovlev, M. Bayer, S. Fafard, Z. Wasilewski, and P. Hawrylak, Phys. Rev. B 72, 165353 (2005).
- [27] T. Nakaoka, E. C. Clark, H. J. Krenner, M. Sabathil, M. Bichler, Y. Arakawa, G. Abstreiter, and J. J. Finley, Phys. Rev. B 74, 121305 (2006).

