

國 立 交 通 大 學

電子物理所碩士班

碩士論文

單量子點與單量子點分子在磁場下  
的光譜研究

Spectroscopic studies of single quantum dots  
and quantum dot molecules in magnetic fields

研究生：林家賢

指導教授：張文豪 教授

中 華 民 國 九 十 七 年 八 月

單量子點與單量子點分子在磁場下的光譜研究

Spectroscopic studies of single quantum dots and  
quantum dot molecules in magnetic fields

研究生：林家賢                      Student : Chia-Hsien Lin

指導教授：張文豪 教授      Advisor : Prof. Wen-Hao Chang

國立交通大學

電子物理系

碩士論文

A Thesis

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

# 單量子點與單量子點分子在磁場下的光譜研究

研究生： 林家賢

指導教授： 張文豪 教授

國立交通大學  
電子物理研究所

## 中文摘要

本論文中探討單一量子點及單一量子點分子中載子受侷限的機制。我們以顯微光激螢光光譜技術偵測單一量子點螢光光譜，並藉由改變雷射激發功率、激發能量，及螢光偏振分析，辨別激子的種類及帶電態。單一 InAs 量子點光譜可以清楚的觀察到不同的激子態，其復合能量除了由量子點尺寸決定，還受到了各個激子態不同的庫侖作用力影響。為了探討庫侖作用力與激子受侷限程度的關係，我們進一步利用顯微磁光技術，藉激子在外加磁場下的反磁能移估計載子波函數分佈，觀察到激子在 InAs 單一量子點中所受強侷限影響有些微的降低，因此必須將庫侖作用對激子侷限的影響加以考慮。

相同的技術也用在單一 InGaA 量子點分子的分析。我們觀察到電子容易被侷限在同一量子點中，而電洞則分別被侷限於不同量子點

中。藉由觀察直接激子及間接激子的顯微磁光光譜及 TEM 影像，可證實電子及電洞分別受到不同的侷限。在水平磁場作用下，直接激子與單量子點中的單激子具有相同的特性。明激子與暗激子在外加水平磁場下形成混態，暗激子由不可與光耦合變成可以與光耦合。間接激子則因波函數重疊降低，電子—電洞交互作用也因而降低，因而無法觀察到間接激子訊號。



# Spectroscopic studies of single quantum dots and quantum dot molecules in magnetic fields

Student : Chia-Hsien Lin

Advisor : Dr. Wen-Hao Chang

Department of Electrophysics  
National Chiao Tung University

## Abstract

We discuss the confined mechanism of different exciton complexes in single quantum dots and quantum dot molecules. With varying laser excitation power and energy, we can identify the different exciton complexes luminescence and model the Coulomb interaction of each exciton complexes. As measuring diamagnetic shifts for different exciton complexes confined in single InAs/GaAs quantum dots, biexcitons and charged excitons were found to exhibit a weaker diamagnetic shift due to the Coulomb interactions among the constituent carriers.

In the magneto-photoluminescence, we deduce exciton g factor of the single InGaAs/GaAs quantum dots to be -0.67. This value is significantly smaller than the reported values ranging from -1.5 to -3. We presumed that such a small g factor might come from the band mixing of light hole and heavy hole.

Finally, with comparing the single InGaAs/GaAs quantum dot

molecules transmission electron microscopy (TEM) image to the spectrum, the direct exciton and indirect exciton was observed due to the electrons had been confined in the same quantum dot.



## 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 李明知老師的提攜與指導，我學到了很多思考問題的方法及突破的技術，在做事情上也學會多觀察與負責，使我有信心做盡力完成每一件事。

謝謝我的父母，能夠讓我無顧忌的努力向前衝，但也請您多保重身體，別累壞了。

謝謝仗哲學長，你是我在實驗室的緩衝，讓我更融入這個實驗室；謝謝林萱學姊，在我遇到問題時能適時的給予意見，使我不至於徬徨無措；謝謝昱安學長，您總是能給我及時的關懷與歡笑；謝謝李寧、京玉、少甫學長姐，給了我很多做事情上的建議與關心。

另外也謝謝聖允，做實驗可以有人互相砥礪與討論，找出關鍵的地方，讓研究得以更順利與深入，除了在大學四年一起度過，並在這兩年的時間成長，真的是一件很幸運的事；謝謝威宇、飽和、小馬、峰毅、志豪、毛頭、子德、阿馬、膺中，大家一起努力完成碩士的學業，有你們的陪伴真好；謝謝阿璋、大雄、小周，你們真的幫了我很多的忙。

# 目錄

中文摘要	i
英文摘要	iii
誌謝	v
目錄	vi
圖片目錄	viii
第一章 簡介	1
第二章 理論背景：磁場中電子—電洞交換作用及反磁能移	4
(一) 磁場中電子—電洞交換作用	4
(二) Zeeman 效應	6
(三) 反磁能移	6
第三章 樣品結構及量測裝置	8
(一) 樣品結構	8
(二) 顯微光激螢光量測系統(Micro PhotoLuminance)	10
第四章 光譜分析及討論	12
(一) 單一 InAs 量子點顯微螢光光譜	12
(二) 單一 InAs 量子點磁場顯微螢光光譜	19
(三) 單一 InGaAs 量子點顯微螢光光譜	30
(四) 單一 InGaAs 量子點分子顯微螢光光譜	34

(五) 單一量子點分子在磁場下的顯微螢光光譜	38
第五章 結論	43
參考資料	44



## 圖片目錄

圖 1-1	自聚式量子點示意圖	2
圖 2-1	電子—電洞交換作用下激子與雙激子示意圖	5
圖 3-1	InAs 量子點結構圖	8
圖 3-2	InGaAs 量子點結構圖	9
圖 3-3	顯微光激螢光量測系統示意圖	11
圖 3-4	外加水平磁場時，樣品附近架構	11
圖 4-1	單一 InAs 量子點顯微螢光光譜	12
圖 4-2	單一 InAs 量子點螢光強度對激發強度圖	14
圖 4-3	電子—電洞交換作用下激子與雙激子示意圖	15
圖 4-4	單一 InAs 量子點線偏振分析光譜	16
圖 4-5	各單一 InAs 量子點顯微螢光光譜比較	18
圖 4-6	外加垂直磁場中單一 InAs 量子點顯微螢光光譜	20
圖 4-7	$X^-$ 、 $X$ 、 $XX$ 、 $X^+$ 在磁場中復合時的能階及總自旋角動量示意圖。	21
圖 4-8	外加垂直磁場單一 InAs 量子點中激子所受 Zeeman 效果	22
圖 4-9	外加垂直磁場單一 InAs 量子點中激子所受反磁能移效果	23
圖 4-10	外加垂直磁場各單一 InAs 量子點中激子所受反磁能移效果	24
圖 4-11	激子所受反磁能移，實驗與擬合的比較	26

圖 4-12	各量子點中 $XX$ 及 $X^+$ 分別以 $\Delta\beta$ 對 $(\beta_x + \Delta\beta)^{3/2}$ 作圖	28
圖 4-13	單一 InGaAs 量子點螢光強度對激發強度圖	30
圖 4-14	外加垂直磁場中單一 InGaAs 量子點顯微螢光光譜	31
圖 4-15	外加垂直磁場單一 InGaAs 量子點中激子所受 Zeeman 效果	32
圖 4-16	Zeeman 效果隨量子點高度的影響	32
圖 4-17	外加垂直磁場單一 InGaAs 量子點中激子所受反磁能移效果及 TEM 圖	33
圖 4-18	單一 InGaAs 垂直耦合量子點分子 TEM 圖	34
圖 4-19	變激發雷射波長單一 InGaAs 量子點分子光譜	34
圖 4-20	各單一 InGaAs 量子點分子顯微螢光光譜比較及激子復合示意圖	36
圖 4-21	單一 InGaAs 量子點分子線偏振分析光譜	37
圖 4-22	外加垂直磁場中單一 InGaAs 量子點分子螢光光譜	38
圖 4-23	外加垂直磁場單一 InGaAs 量子點分子中激子受 Zeeman 效果及反磁能移效果	39
圖 4-24	外加水平磁場中單一 InGaAs 量子點分子螢光光譜	40
圖 4-25	外加水平磁場單一 InGaAs 量子點分子中直接激子與間接激子的能量變化	41

## 第一章 簡介

在近幾年來，半導體元件的微型化已經成為主流，其過程從三維塊材到二維量子井到一維量子線，最後到達零維的量子點。量子點是個可以將導帶電子、價帶電洞或激子(Exciton)在空間中三個方向束縛住的半導體奈米結構。這種約束可以區分為由靜電勢（由外部的電極，或半導體中摻雜、應變、雜質），半導體異質界面(自聚式量子點)，半導體的表面(半導體奈米晶體)，或者以上三者的結合。載子被束縛在量子點中，如同被侷限在一個三維量子井當中，使載子能量呈現不連續，此稱為量子侷限(Quantum confinement)。因此量子點又被稱為人造原子(Artificial atom)。

半導體量子點的製造，目前有幾個方式：(1)利用凝膠溶液以化學方式混合出奈米晶體<sup>[1]</sup>，(2)以蝕刻量子井方式製程量子點<sup>[2]</sup>，(3)利用參雜方式在材料介面上聚集二維電子氣，再以電極外加偏壓方式侷限二維空間分佈<sup>[3]</sup>，(4)利用異質介面應力(Strain-induced)誘發形成自聚式(Self-assembled)量子點<sup>[4]</sup>。其中又以自聚式量子點所伴隨的缺陷最少，可以大量製造，且光學特性極佳。異質介面應力的來源主要是不同材料間晶格常數的不同，如圖 1-1 兩種材料間會在介面處利用產生彈性形變來改變晶格常數以釋放應力。因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。

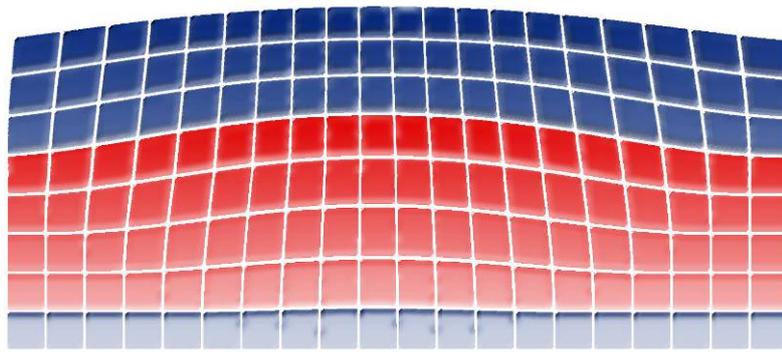


圖 1-1 不同材料介面藉由改變晶格常數來釋放應力，並形成自聚式量子點。

近年來在光纖通訊<sup>[5]</sup>、照明或是量子密碼學<sup>[6][7]</sup>上，自聚式量子點 (Self-assembled quantum dots) 都扮演了很重要的角色。自聚式量子點是個可以穩定侷限載子，並藉由改變量子點尺寸，放出較長波長螢光訊號的結構，因此在光纖通訊上扮演了重要的角色。

直到了近半世紀，半導體介觀及奈米結構的出現，許多的研究中發現了量子光學的現象，進而延伸出了半導體量子光學這塊新的研究領域。對於量子光學的應用，其目的在於對量子態的控制來達到量子密碼的發展，而自聚式量子點在量子光學上的研究，還是處於比較理論上的階段，目前對量子點較為被研究的有：電子及電洞波函數受量子侷限的影響<sup>[8][9]</sup>、各激子態之間的傳遞<sup>[10][11]</sup>及同調性的控制<sup>[12][13]</sup>...等，而這些研究都有一個主要的共通點，便是必須對單一量子點作量測。

本論文中，我們利用顯微光激螢光光譜及磁場顯微光激螢光光

譜，探討 MBE 成長的單一砷化銦量子點，以及 MOCVD 成長的單一砷化銦鎵量子點，其電子及電洞自旋角動量，以及庫侖作用和波函數分布之間的關係。此外，我們也利用這些光譜技術研究垂直堆疊的單一砷化銦鎵量子點分子，探討其耦合特性、侷限態對稱性及明暗激子的混態情況。



## 第二章 理論背景：磁場中電子—電洞交換作用及反磁能移

對於被量子點所侷限住的電子及電洞，藉由一般的光學量測，是很難偵測其波函數的分布情形。為此，我們量測磁場作用下的量子點螢光光譜，希望藉此解析量子點的量子侷限效應。以下即針對量子點在磁場作用下的效應分別說明。

### (一) 磁場中電子—電洞交換作用

在沒有外加磁場時，量子點中的電子及電洞因為自旋角動量耦合，會有電子—電洞交換作用<sup>[14]</sup>，其值與波函數有關，可表示成：

$$E_{exchange} \propto \iint d^3r_1 d^3r_2 \psi_X^*(r_e=r_1, r_h=r_2) \frac{1}{|r_1-r_2|} \psi_X(r_e=r_2, r_h=r_1) \dots (1)$$

而其 Hamiltonian 可寫為

$$H_{exchange} = - \sum_{i=x,y,z} (a_i J_{h,i} S_{e,i} + b_i J_{h,i}^3 S_{e,i}) \dots (2)$$

其中  $a_i$  和  $b_i$  分別是 x, y, z 三個方向的自旋-自旋耦合常數，其值和量子點侷限位能有關；  $S_e$  表示電子自旋 ( $S_e = \pm 1/2$ ) 而  $J_h$  表示電洞自旋 ( $J_h = \pm 1/2, \pm 3/2$ )。單激子態，由一個電子及一個電洞組成，其總自旋角動量可分為  $M = \pm 1$  的明激子態及  $\pm 2$  暗激子態兩類。若先不考慮輕電洞態，並以  $|+1\rangle$ 、 $|-1\rangle$ 、 $|+2\rangle$ 、 $|-2\rangle$  為四個基底，當量子點的侷限位能不對稱 ( $\langle D_{2d} \rangle$ )  $b_x \neq b_y$  時，可以藉由解出其本徵能量及本徵態而得到圖 2-1 中虛線以左的能階分佈。

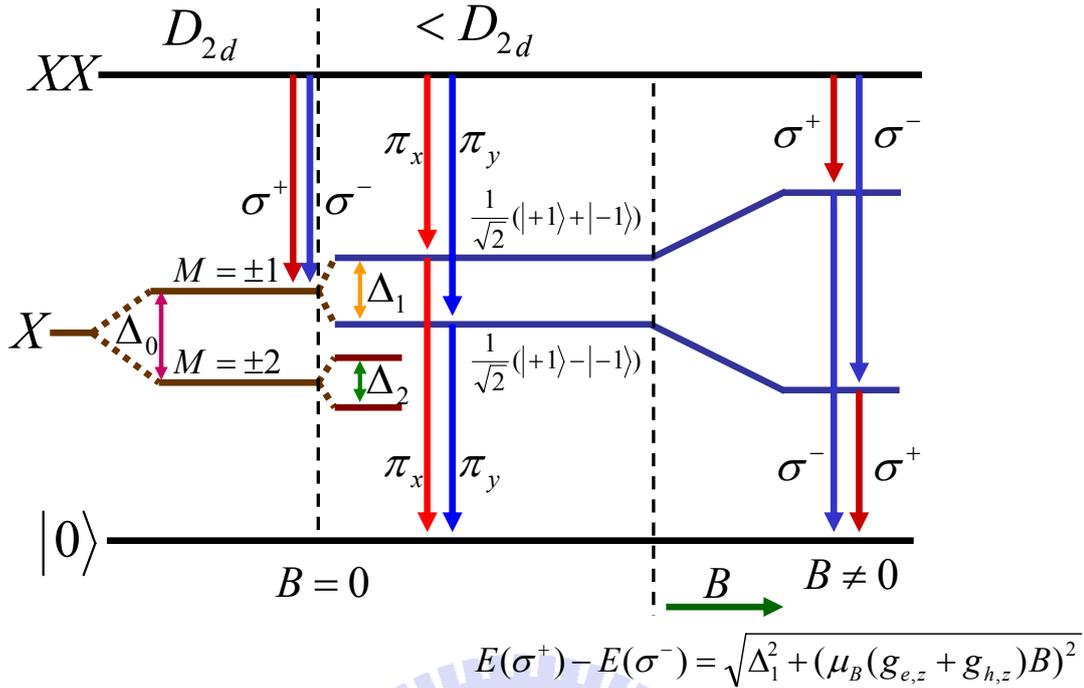


圖 2-1 考慮電子—電洞交換作用時，激子與雙激子在量子點中的能階分布。這邊均只考慮到量子點侷限位能不對稱時。

當在量子點對稱性受到破壞時，明激子( $M=\pm 1$ )不同自旋態會因為電子—電洞交換作用而分裂，形成兩個分別為  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle)$  及  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle)$  的態且能量差為  $\Delta_1$  (數十個  $\mu\text{eV}$ )，如圖 2-1 所示。因此原本應發出左旋及右旋光的明激子態( $M=\pm 1$ )，將因交換作用而合成一組相互正交的線偏振態。

雙激子因電子及電洞的總角動量為零，所以不論是電子—電洞交換作用或外加磁場的影響，都不會產生精細結構的分裂。然而，由於雙激子復合後會形成單激子態，因此雙激子復合所發出的光子也會形

成一組正交的線偏振光，且能量差也是  $\Delta_1$ ，但偏振態正好與激子態相反。

## (二) Zeeman 效應

在垂直磁場( $\vec{B} // \hat{z}$ )作用下， $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle)$  及  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle)$  的能階則會受到 Zeeman 效應的影響<sup>[15]</sup>，進而分裂成能量差為  $\sqrt{\Delta_1^2 + [\mu_B(g_{e,z} + g_{h,z})B]^2}$  的兩個能階，其中  $g_{e,z}$ 、 $g_{h,z}$  分別代表電子及電洞在 z 方向的 g 因子(g factor)。磁場逐漸增大後， $[\mu_B(g_{e,z} + g_{h,z})B]^2$  將  $\gg \Delta_1^2$ ，使得分裂的現象由 Zeeman 效應主導：

$$\Delta E = \mu_B(g_{e,z} + g_{h,z})B \dots (3)$$

## (三) 反磁能移

外加垂直磁場時，除了會造成 Zeeman 能階分裂外，還可觀察到隨著磁場的增加，能階逐漸往高能量移動，稱之為反磁能移(Diamagnetic shift)<sup>[8][9]</sup>。在弱場作用下，磁場對激子的影響可視為微擾(perturbation)

$$\hat{H}' = \frac{e^2 \vec{A}^2}{2m^*} \dots (4)$$

其中  $\vec{A}$  為磁場的向量位勢(Vector potential)。當磁場為垂直量子點的 z 方向時， $\vec{B} = \nabla \times \vec{A} = B\hat{z}$ ，則  $\vec{A} = \left(\frac{B}{2}\right)(-y\hat{x} + x\hat{y})$ 。因此微擾可修正為

$$\hat{H}' = \frac{e^2 B^2}{8m^*} (x^2 + y^2) = \frac{e^2 B^2 r^2}{8m^*} \dots (5)$$

作用在激子的波函數時，在一階微擾近似下，可得到能量位移量

$$\Delta E_{Diamagnetic}^X = \frac{e^2}{8} \left( \frac{\langle r_e^2 \rangle}{m_e^*} + \frac{\langle r_h^2 \rangle}{m_h^*} \right) B^2 = \beta_{SP} \cdot B^2 \dots (6)$$

其中  $r_e$ 、 $r_h$  分別為電子及電洞在量子點中，x-y平面上波函數被侷限的半徑。由上式可發現，反磁能移與磁場平方成正比，而其比例常數  $\beta_{SP}$  稱為反磁能移係數。若量子點x-y平面為圓柱對稱， $\beta_{SP}$  則可用來估計激子在量子點中被侷限的程度。能量位移為藍移，可由冷次定律 (Lenz's law) 解釋：外加磁場會感應出一個反向的磁偶極矩，而這個感應偶極矩 (Induced dipole moment) 會隨磁場增加而造成一個正比於磁場平方的能量位移。



### 第三章 樣品結構及量測裝置

#### (一) 樣品結構

本論文所研究的樣品有兩種，分別為 MBE 所成長的單層砷化銦量子點，由交通大學電子工程系林聖迪教授提供；以及以 MOCVD 所成長的單層砷化銦鎵量子點及垂直堆疊的量子點，由中央大學電機系蔡振瀛教授提供。

其中MBE成長的砷化銦量子點樣品，結構如圖3-1。在成長的過程中，首先在砷化鎵基板(100)方向上先成長約100 nm的緩衝層，目的在於使磊晶的表面層平坦且減少基板表面的缺陷。在緩衝層上再成長100 nm的砷化鎵後，便接著利用Stranski-Krastanow成長法來成長一層砷化銦(2.2 ML)量子點。成長一層的量子點之後，覆蓋100 nm 的砷化鎵覆蓋層。最後再以相同的磊晶條件成長一層砷化銦(2.2 ML)量子點，作為觀察量子點的表面形態使用。

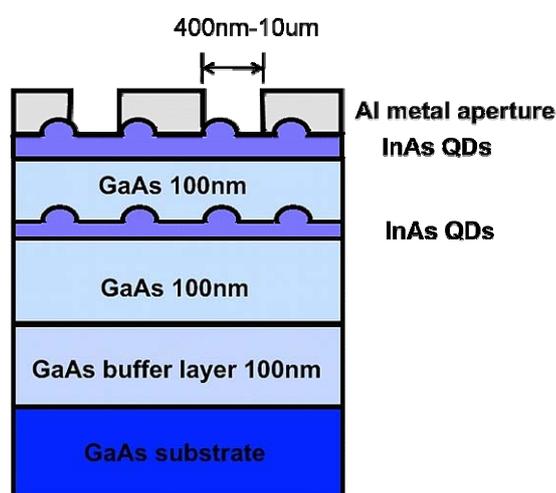


圖 3-1 砷化銦量子點樣品結構圖

為了增加我們量測到單一量子點訊號的機率，而在樣品上多覆蓋了一層鋁金屬，並在上面利用電子束微影技術製作一系列直徑約400 nm - 10 $\mu$ m 的奈米孔穴<sup>[10]</sup>。

而MOCVD成長的砷化銦鎵量子點樣品，結構如圖3-2。首先在n型砷化鎵基板(001)方向上先成長約100 nm的緩衝層，在緩衝層上再成長100 nm的砷化鎵後，接著依序長上500 nm Al<sub>0.8</sub>Ga<sub>0.2</sub>As與80 nm砷化鎵，接著利用Stranski-Krastanow成長法來成長一層砷化銦鎵量子點及垂直堆疊的兩層砷化銦鎵量子點。成長量子點之後，覆蓋薄薄砷化鎵當作覆蓋層。

同樣為了增加我們量測到單一量子點訊號的機率，而在樣品上覆蓋了一層鋁金屬，接著再以顯微螢光光譜技術，將雷射光聚焦至這些孔穴，激發並偵測單一量子點訊號。

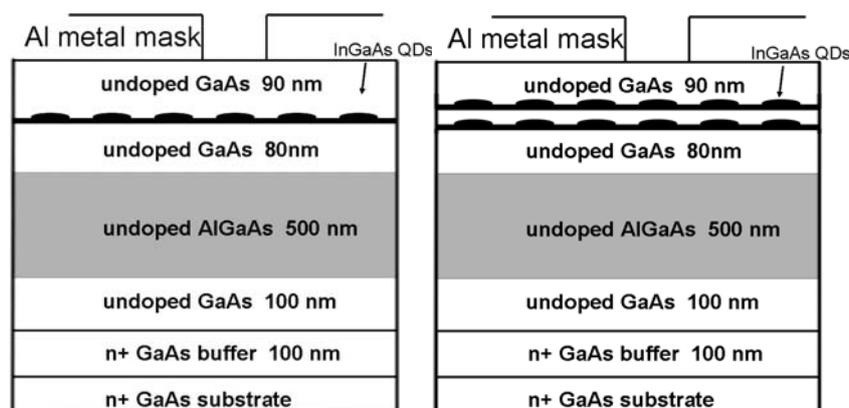


圖 3-2 砷化銦鎵量子點樣品結構圖

## (二) 顯微光激螢光量測系統(Micro photoluminance)

顯微光激螢光光譜實驗架設如圖3-3所示，圖中分為監控系統及光譜量測系統。監控系統中兩片分光鏡(Beam Splitter, B.S.)可同時讓雷射光及白光燈源打至樣品表面，反射後於 CCD 成像。因此在監視螢幕上可以觀察到金屬奈米孔徑的影像和雷射聚焦情形，再利用移動平台調整樣品左右位置及焦距。雷射光經過100倍物鏡聚焦到樣品表面時，光點直徑大小約為 $2\mu\text{m}$ 左右。當雷射聚焦至金屬奈米孔徑時可以激發出量子點螢光，接著可藉由同一物鏡收光，再由光譜儀分光後以Si-CCD偵測螢光光譜。

為了進行螢光光譜的偏振光分析，我們利用二分之一及四分之一波長波片和偏振晶體，並將其架設在進入光譜儀前光路上。

由於我們系統的磁場方向固定為垂直(z)方向，為了在樣品上外加水平磁場，我們設計了個樣品座及反射鏡，如圖3-4所示。

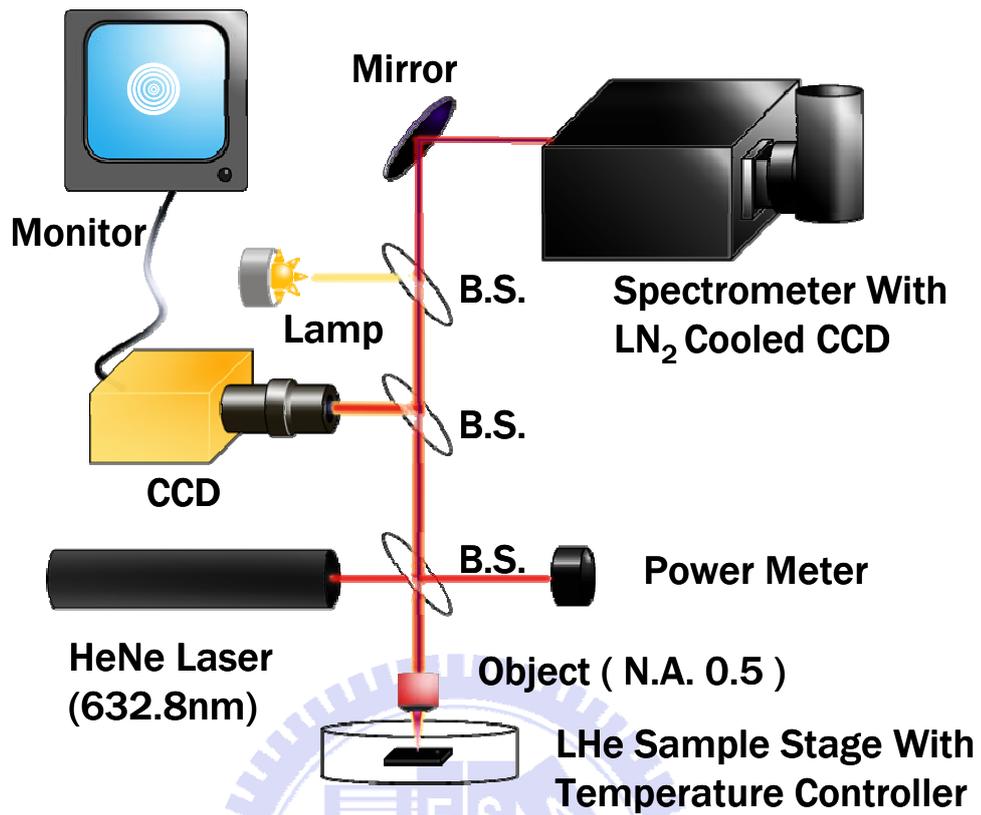


圖 3-3 顯微光激螢光量測系統

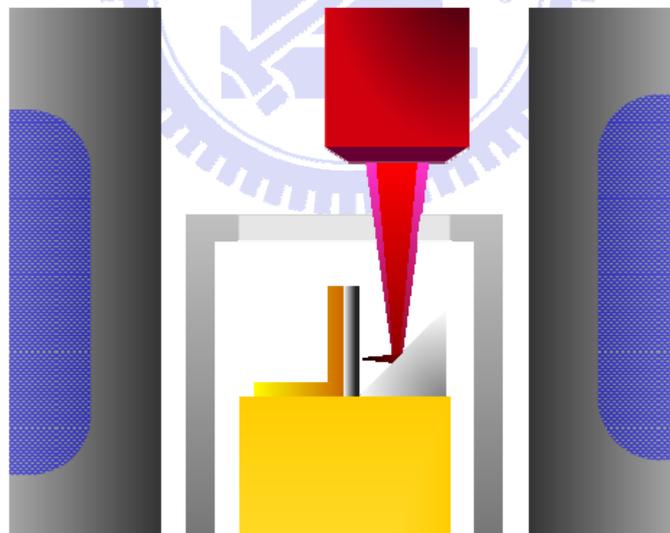


圖 3-4 外加水平磁場時，樣品附近的架構

## 第四章 光譜分析及討論

偵測單一自聚式量子點螢光光譜，其困難在於如何從高密度量子點的樣品中，僅針對少數量子點或單一量子點作激發並接收其螢光訊號。我們所採取的方式是在樣品上覆蓋上一層厚度約 100 nm 的鋁金屬，並以電子束微影技術製作一系列直徑約 300-500 nm 的奈米孔穴。利用顯微螢光光譜技術，將雷射光聚焦至這些孔穴，即可激發並偵測單一量子點訊號。

### (一) 單一 InAs 量子點顯微螢光光譜

首先，我們先針對樣品上不同直徑的孔穴進行顯微螢光光譜量測，並判斷哪些孔穴僅含有單一量子點。通常在非常低的激發功率下，若只觀察到單一譜線，即可判定該孔穴僅含有單一量子點。

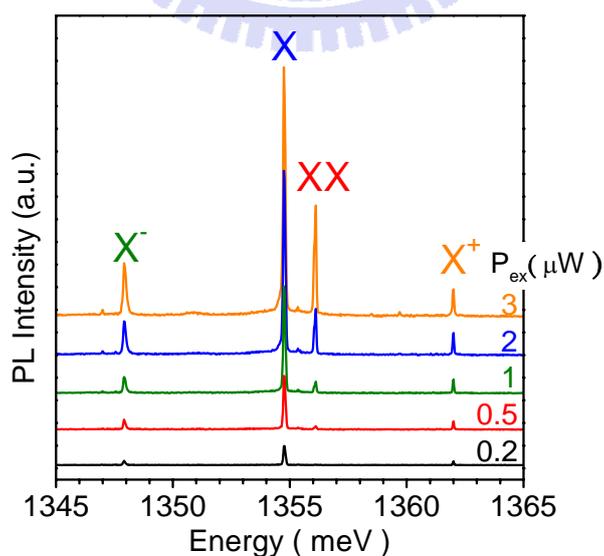


圖 4-1 在不同雷射激發功率下，透過小孔徑所偵測到的單一 InAs 量子點顯微螢光光譜。

圖 4-1 即為透過孔穴在不同激發功率下所偵測的單一 InAs 量子點譜線。在雷射功率降至  $0.2\mu\text{W}$  ( $0.06\text{ W/cm}^2$ )時，只有能量在  $1354.8\text{ meV}$  的單一譜線，因此推測其為單一量子點中的單激子(single Exciton)復合後所發出的螢光訊號。隨著雷射激發功率上升，單位時間內被量子點捕獲的電子及電洞數量也隨之上升。在較高功率激發時，我們可觀察到激子(Exciton)( $X$ )、雙激子(Biexciton) ( $XX$ )等訊號。由於量子點中電子及電洞填入的數量是受到激發功率影響，藉由分析激發功率與螢光訊號強度的關係，即可區分出激子類(Exciton like)及雙激子類(Biexciton like)的訊號。圖 4-2 即為圖 4-1 中四條譜線強度與激發功率的關係圖。由圖 4-2 可發現，除了雙激子( $XX$ )訊號強度隨激發功率呈平方關係外，其餘三條譜線均呈現線性關係，因此判斷其為激子訊號，但可能分別為激子的不同帶電狀態。

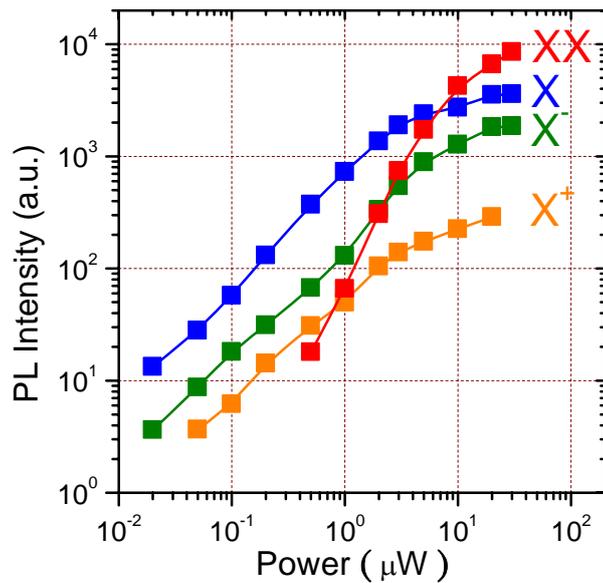


圖 4-2 螢光強度對激發強度的關係。由斜率可區分出激子 (Exciton)及雙激子(Biexciton)訊號。

為了進一步區分出各激子訊號所代表的帶電態(電中性或帶電激子)，我針對這些螢光訊號進行線偏振的分析。由於量子點的侷限位能在平面方向的對稱性可能因量子點的幾何形狀或壓電場 (Piezo-electric field)而受到破壞( $<D_{2d}$ )，量子點內的激子態會因電子—電洞交換作用而產生能階分裂。若電子自旋以  $S_e$  表示而電洞自旋以  $J_h$  表示，則電子—電洞交換作用可表示如下：

$$H_{exchange} = - \sum_{i=x,y,z} (a_i J_{h,i} S_{e,i} + b_i J_{h,i}^3 S_{e,i}) \dots (2)$$

其中  $a_i$  和  $b_i$  則是 x,y,z 三個方向的自旋-自旋耦合常數，其值和量子點侷限位能有關。

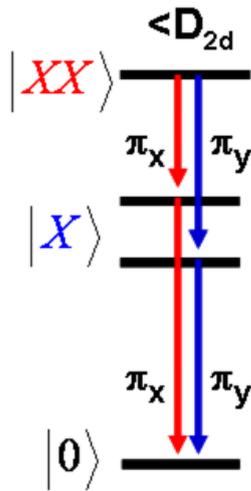


圖 4-3 如圖 2-1

由於量子點受應力作用，重電洞及輕電洞的能階會因此分開數十個 meV，其值遠大於電子—電洞交換作用所造成的精細結構(~數十個  $\mu\text{eV}$ )，因此在討論電子—電洞交換作用時，可以先忽略輕電洞對激子所造成的影響。由重電洞及電子組成的激子，其總自旋角動量包含  $M=\pm 1, \pm 2$ ，其中  $M=\pm 1$  可與光子耦合，稱為明激子(Bright exciton)；而  $M=\pm 2$  無法與光子耦合，因而稱為暗激子(Dark exciton)。當量子點對稱性受到破壞時，明激子不同自旋態會因為電子—電洞交換作用而分裂，形成兩個分別為  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle)$  及  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle)$  的態，其能量差為  $\Delta_1$ ，如圖 4-3 所示<sup>[15]</sup>。因此原本應發出左旋及右旋光的  $M=\pm 1$  明激子態，將因交換作用而混合成一組相互正交的線偏振態。另一方面，由於雙激子中電子及電洞總自旋角動量皆為零，因此沒有電子—電洞交換作用。然而，雙激子復合後會形成單激子態，因

此雙激子復合所發出的光子形成一組正交的線偏振光，且能量差也是  $\Delta_1$ ，但偏振態正好與激子態相反；即  $\pi_x$  的雙激子能量比  $\pi_y$  低，而  $\pi_x$  的激子能量會比  $\pi_y$  高，如圖 4-3 所示。

若考慮非中性的帶電激子，因為多了一個載子填入了 S 殼層，使得電子( $X^-$ )或電洞( $X^+$ )的總自旋角動量為零，因此不存在電子—電洞交換作用，也不會觀察到超精細結構。圖 4-4 即為各譜線的線偏振態分析。由該圖可發現， $X$  與  $XX$  具有互補的線偏振分裂，其  $\Delta_1$  約為  $50\mu\text{eV}$ 。而  $X^-$  及  $X^+$  譜線則沒有上述的精細能階分裂，證實其為帶電激子態。

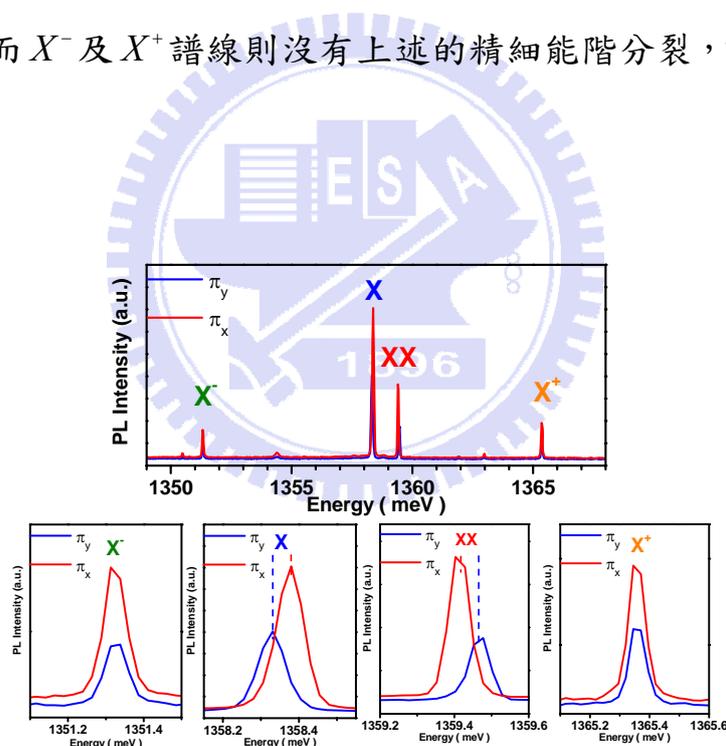


圖 4-4 藉由螢光光譜的偏振分析，可以觀察到  $X$  及  $XX$  的超精細結構，其中  $\pi_x$  及  $\pi_y$  的能量大小相反，大約差了  $50\mu\text{eV}$  的電子—電洞交換作用，而帶電激子  $X^-$  和  $X^+$  則觀察不到超精細結構。

各激子與雙激子態  $X$ 、 $XX$ 、 $X^-$  和  $X^+$  之間的能量差，與載子間

庫倫作用力有關。其復合的螢光能量可表示如下：

$$E_X = \varepsilon_e + \varepsilon_h - V_{eh} \dots (7)$$

$$E_{X^-} = E_X + V_{ee} - V_{eh} \dots (8)$$

$$E_{X^+} = E_X + V_{hh} - V_{eh} \dots (9)$$

$$E_{XX} = E_X + V_{ee} + V_{hh} - 2V_{eh} \dots (10)$$

其中  $\varepsilon_e$  及  $\varepsilon_h$  分別為電子及電洞在 S 殼層中的動能，而  $V_{ij}$  則為直接庫倫

作用能，與電子或電洞的波函數有關，可表示如下：

$$V_{ij} = \int d^3\bar{r} d^3\bar{r}' \psi_i^*(\bar{r}) \psi_j^*(\bar{r}') \frac{e^2}{|\bar{r} - \bar{r}'|} \psi_j(\bar{r}') \psi_i(\bar{r}) \dots (11)$$

其中  $ij=e,h$ 。由於量子侷限的效應，電子及電洞被限制在量子點中，載子之間無法藉由改變彼此距離來降低庫倫作用力，因此載子間的直接庫倫作用能主要是由載子在量子點當中的波函數分布決定。由螢光光譜中可以發現，雙激子  $XX$  的能量高於激子  $X$  的能量，即  $E_{XX} - E_X = V_{ee} + V_{hh} - 2V_{eh} > 0$ ，此結果代表  $V_{ee} \neq V_{hh} \neq V_{eh}$ 。主因是電子及電洞在量子點中侷限程度不同(波函數分布不同)，造成載子間庫倫作用不同。由 A. J. Williamson 等人的計算<sup>[16]</sup>，因電洞的等效質量比電子重，其波函數亦較為侷限，造成  $V_{hh} > V_{eh} > V_{ee}$ 。參考方程式(7)-(10)即可判斷，各激子態復合的能量由低到高依序為  $X^-$ 、 $X$ 、 $XX$ 、 $X^+$ 。

為了驗證直接庫倫作用能的正確性，我們量測了幾個不同的量子點譜線，並比較各激子態之間的能量差。圖 4-5 即為六個不同量子點

的譜線，並以其  $X$  能量為零點作圖。由該圖可以發現  $X-X^-$  的能量差約等於  $X^+-XX$  的能量差。從方程式(7)-(10)的螢光能量中，我們可以看出  $E_X - E_{X^-} = E_{X^+} - E_{XX} = V_{ee} - V_{eh}$ ，與實驗的結果相符。

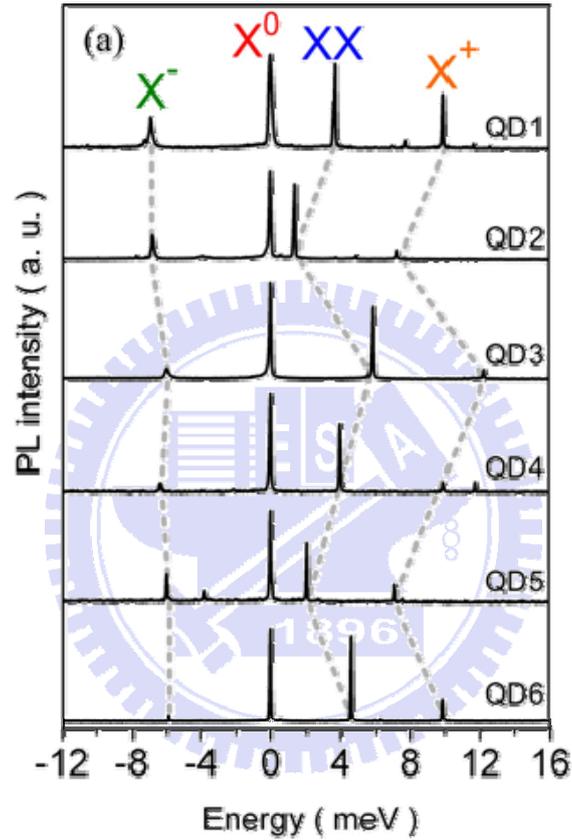


圖 4-5 將幾個不同的量子點訊號以  $X$  的能量為零點作圖，可觀察到  $X-X^-$  的能量差約等於  $X^+-XX$  的能量差

## (二) 單一 InAs 量子點磁場顯微螢光光譜

為了偵測量子點中電子及電洞的侷限情形，我們對量子點外加垂直方向的磁場(Faraday configuration)，並偵測磁場作用下的顯微螢光光譜。

在垂直外加磁場作用下，電子( $S_e = \pm 1/2$ )及電洞( $J_h = \pm 3/2$ )會因為自旋角動量不同，造成不同的分裂量，稱之為 Zeeman 分裂。此外，總自旋角動量  $M = \pm 1$  的明激子態，在與光耦合的過程中，將會分為能量較高的左旋光( $\sigma^-$ )及能量較低的右旋光( $\sigma^+$ )。另一方面，電子及電洞在外加磁場作用下，會感應出一個與外加磁場相反的磁偶極矩(Induced magnetic dipole moment)，因此將激子推向較高的能量，稱為反磁能移(Diamagnetic Shift)。反磁能移的大小與外加磁場呈平方關係，且與電子及電洞在量子點中的波函數分佈大小有關。

圖 4-6 為單一 InAs 量子點於垂直磁場中，在不同磁場下所偵測的螢光光譜。由該圖可以發現四個激子態隨著磁場的增加，各自分裂為高能量  $E_{\sigma^-}$  及低能量  $E_{\sigma^+}$  的能階，且其中心能量  $\frac{1}{2}(E_{\sigma^-} + E_{\sigma^+})$  也隨磁場的增加而藍移。在垂直磁場作用下，明激子( $X$ )會受到 Zeeman 效應的影響，由能量差為  $\Delta_1$  的兩個能階  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle)$  及  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle)$  變成能量差為  $\sqrt{\Delta_1^2 + \alpha_1^2}$  的兩個能階，分別為

$$|L_{-}\rangle = N_1[|+1\rangle + (\frac{\alpha_1}{\Delta_1} + \sqrt{1 + \frac{\alpha_1^2}{\Delta_1^2}})|-1\rangle] \dots (12)$$

$$|L_{+}\rangle = N_2[|+1\rangle + (\frac{\alpha_1}{\Delta_1} - \sqrt{1 + \frac{\alpha_1^2}{\Delta_1^2}})|-1\rangle] \dots (13)$$

其中  $N_1$ 、 $N_2$  為隨磁場而變的歸一化常數， $\alpha_1 = \mu_B(g_{e,z} + g_{h,z})B$ ， $g_{e,z}$  及  $g_{h,z}$  為電子跟電洞在垂直量子點方向的  $g$  因子，而  $g$  因子的大小則正比於載子的自旋角動量大小。因為能階中  $|+1\rangle$  及  $|-1\rangle$  的佔有比例不再是 1:1，所以復合的激子放出的螢光會由原本相互正交的線偏振光，隨著磁場變大而逐漸變成左右旋偏振光。其中  $|L_{-}\rangle$  將會由能量差  $\frac{\Delta_1}{2}$  的  $\pi_x$  方向線偏振光變成差  $\frac{1}{2}\sqrt{\Delta_1^2 + \alpha_1^2}$  的左旋偏振光 ( $\sigma^-$ )，而  $|L_{+}\rangle$  則由能量差  $-\frac{\Delta_1}{2}$  的  $\pi_y$  方向線偏振光變成差  $-\frac{1}{2}\sqrt{\Delta_1^2 + \alpha_1^2}$  的右旋偏振光 ( $\sigma^+$ )。當磁場夠大時， $\alpha_1 \gg \Delta_1$ ， $|L_{+}\rangle$  及  $|L_{-}\rangle$  的分裂則由 Zeeman 分裂主導。

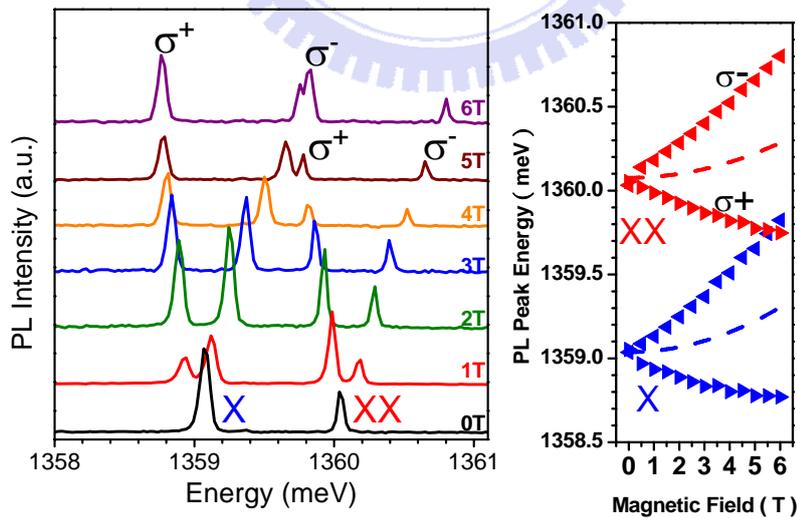


圖 4-6 隨著垂直加在樣品上的磁場增加，我們可以觀察到原本激子的訊號分裂為高能量的左旋光 ( $\sigma^-$ ) 及低能量的右旋光 ( $\sigma^+$ )，並發現訊號能量的中心位置出現藍移 (Blue shift)。

雙激子  $XX$  因總自旋角動量為零，在磁場中是不會受到 Zeeman 效應影響而分裂。然而，由於雙激子復合後會回到激子態，其總自旋角動量的改變量為  $\pm 1$ ，跟激子  $X$  復合後的改變量相同，所以雙激子與激子能階的分裂量是一樣的，同理推算出來的  $g$  因子也應該要相同。

對於帶電激子，同理因為復合前後的總自旋角動量改變量也為  $\pm 1$ ，如圖 4-7 所示，因此  $X^-$ 、 $X$ 、 $XX$ 、 $X^+$  在磁場中推算出來的  $g$  因子應該都要相同。

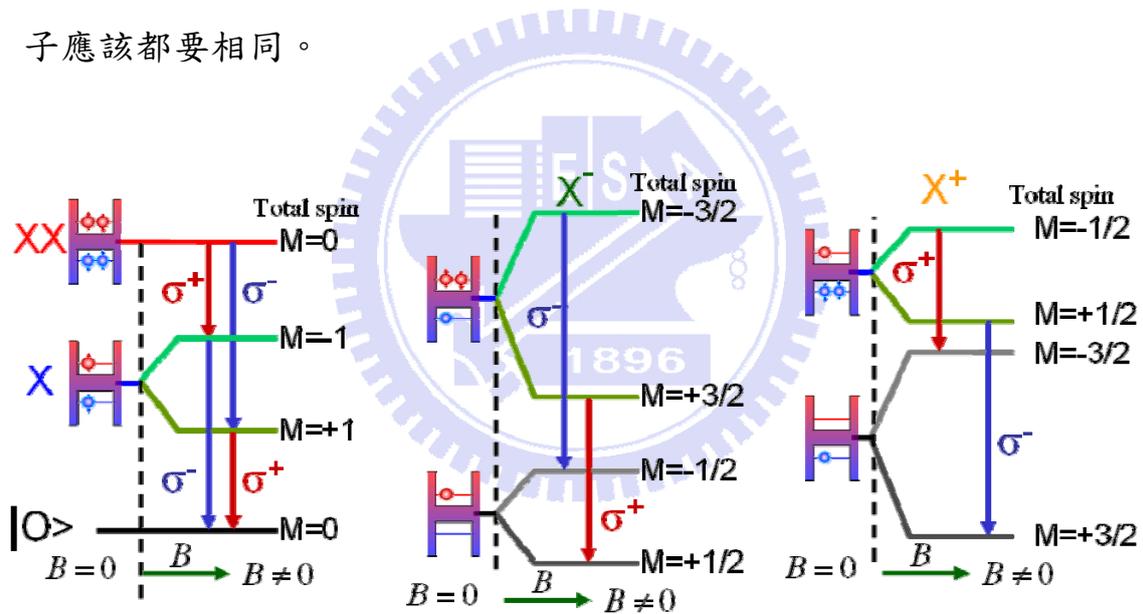


圖 4-7  $X^-$ 、 $X$ 、 $XX$ 、 $X^+$  在磁場中復合時的能階及總自旋角動量示意圖。

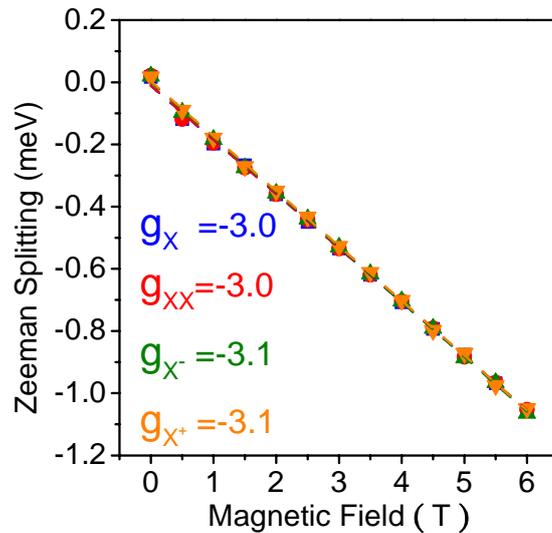


圖 4-8 將能階分裂量( $E(\sigma^+) - E(\sigma^-)$ )對磁場作圖，可以擬合出各種激子態的  $g$  因子，並發現他們幾乎是一樣的。

在圖 4-8 中我們將能階分裂量( $E(\sigma^+) - E(\sigma^-)$ )對磁場作圖，並對其作線性的擬合，可以觀察有上述的現象，各個不同的激子態其分裂的量都相當一致。

在圖 4-6 的磁場螢光光譜中，除了觀察到造成能階分裂為高低能量的 Zeeman 效應外，還觀察到分裂後的能階中心也隨著磁場的增加，而逐漸往高能量移動，稱之反磁能移(Diamagnetic Shift)。在弱場作用中，磁場對激子的影響可視為微擾(perturbation)，可寫成

$$\hat{H}' = \frac{e^2 \bar{A}^2}{2m^*} \dots (4)$$

其中  $\bar{A}$  為磁場的向量位勢(Vector potential)。當磁場為垂直量子點時(z

方向)， $\vec{B} = \nabla \times \vec{A} = B\hat{z}$  時，則  $\vec{A} = (B/2)(-y, x, 0)$ ，微擾項可寫成，

$$\hat{H}' = \frac{e^2 B^2}{8m^*} (x^2 + y^2) = \frac{e^2 B^2 r^2}{8m^*} \dots (5)$$

因此作用在激子的波函數時，可得到能量位移量

$$\Delta E_{Diamagnetic}^X = \frac{e^2}{8} \left( \frac{\langle r_e^2 \rangle}{m_e^*} + \frac{\langle r_h^2 \rangle}{m_h^*} \right) B^2 = \beta \cdot B^2 \dots (6)$$

其中  $r_e$ 、 $r_h$  分別為電子及電洞在  $x$ - $y$  平面上波函數被侷限的半徑。

若假設量子點  $x$ - $y$  平面為圓柱對稱， $\beta$  則可用來估計激子在量子點中被侷限的程度。能量位移為藍移，可由冷次定律(Lenz's law)解釋：外加磁場會感應出一個反向的磁偶極矩，而這個感應偶極矩(Induced dipole moment)會隨磁場增加而造成一個正比於磁場平方的能量位移。

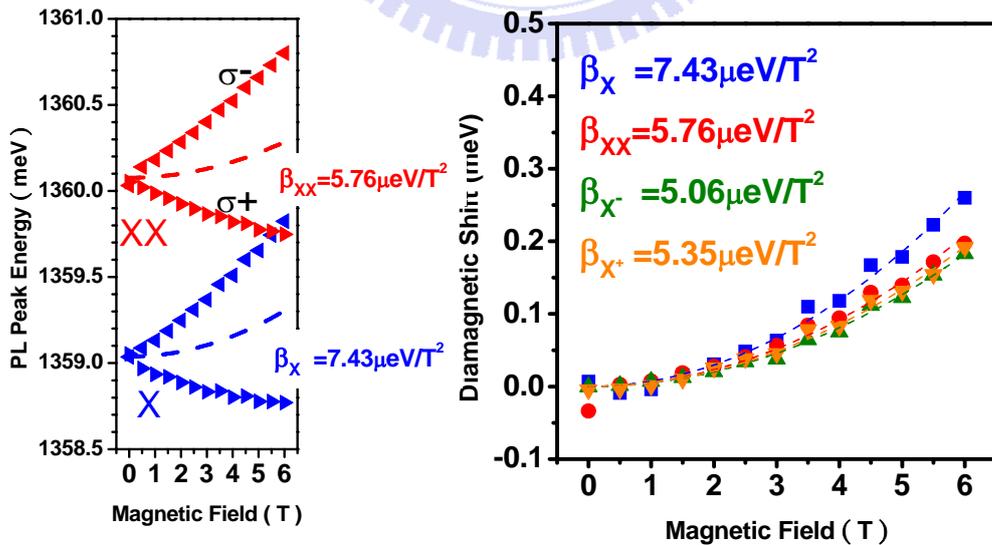


圖 4-9 將能階中心  $[(E(\sigma^+) + E(\sigma^-))/2]$  對磁場作圖，可以擬合出各種激子在量子點中波函數被侷限的程度。

在圖 4-9 中，我們將中心能量  $[(E(\sigma^+) + E(\sigma^-))/2]$  對磁場作圖。中心能量隨磁場增加而呈平方關係，而其比例係數  $\beta$  則反應出載子波函數被量子點侷限的程度。由圖 4-9 可發現， $\beta_X$  較  $\beta_{XX}$ 、 $\beta_{X^-}$ 、 $\beta_{X^+}$  來的大。我們認為直接庫侖作用力與波函數侷限有直接的關係，且會隨著磁場變化有些微的變化，而其變化程度則因不同的激子形式而有所不同。因此反磁能移係數  $\beta$  應包含單粒子態及庫侖作用的貢獻，可以寫成  $\beta = \beta^{SP} + \beta^{Coulomb}$ 。因此我們所觀察的  $\beta$  有所不同，主要來自庫侖作用的修正。

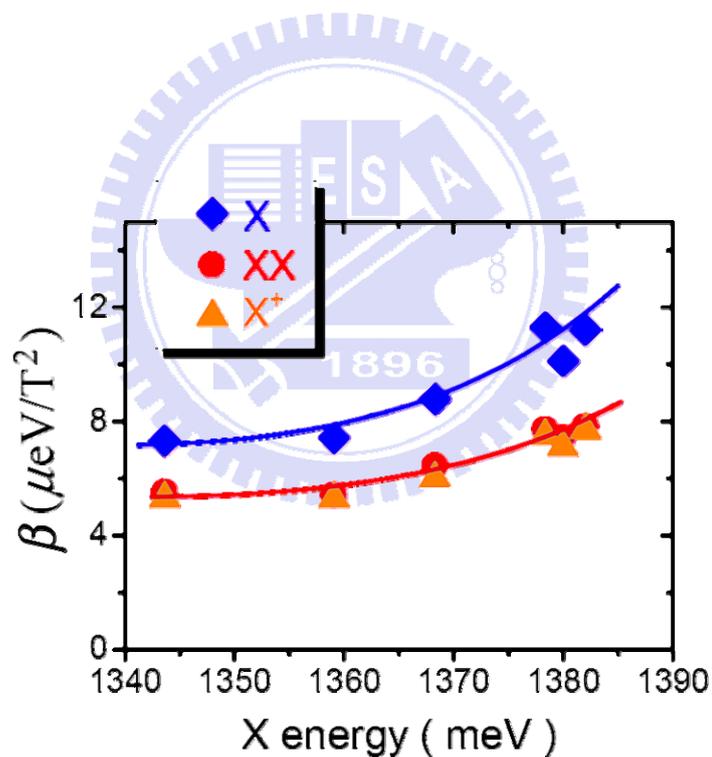


圖 4-10 不同量子點中  $X$ 、 $XX$  及  $X^+$  的反磁能移係數  $\beta$  對激子 ( $X$ ) 的激發能量作圖。

由圖 4-10 不同量子點反磁能移係數 $\beta$ 的分布中，我們可以發現同量子點中，激子( $X$ )的反磁能移係數總是比雙激子( $XX$ )及帶正電荷的激子( $X^+$ )還來得大，且雙激子及帶正電荷的激子反磁能移係數是差不多的。此外對於激子的激發能量，通常激發能量越大代表量子點的尺寸越小，但這邊卻是觀察到隨著量子點的尺寸越小，激子波函數被侷限的程度越小，波函數的分布越廣。

為了進一步探討反磁能移係數 $\beta$ 與載子波函數的分佈，這邊試著利用二維的拋物線位障做一個解釋。在二維的拋物線位障中，我們可以得到電子及電洞的量子化能量為 $\hbar\omega_\alpha$ 及載子波函數分佈量為 $l_\alpha = \sqrt{\hbar/m_\alpha^*\omega_\alpha}$ ，其中 $\alpha = e, h$ 為電子或電洞，而 $m_\alpha^*$ 為有效質量， $\omega_\alpha$ 為單一粒子能階中的特徵頻率。

由 S.-J Cheng 所提出的計算<sup>[17]</sup>， $X^-$ 、 $X$ 、 $XX$ 及 $X^+$ 在最低能量的 s 殼層中的庫倫位能為

$$V_{\alpha\alpha'} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{1}{l} \dots (14)$$

其中 $l \equiv \sqrt{(l_\alpha^2 + l_{\alpha'}^2)/2}$ 而 $\alpha, \alpha' = e, h$ 。

在外加磁場時，單一粒子的特徵頻率 $\omega_\alpha$ 可以被替換為與磁場相關的頻率函數

$$\Omega_\alpha(B) = \sqrt{\omega_\alpha^2 + \left(\frac{\omega_c^\beta}{2}\right)^2} \dots (15)$$

其中  $\omega_c^\beta = eB/m_\alpha^*$  為粒子在磁場中的旋轉頻率(Cyclotron frequency)。

在利用數值擬合時，假設  $l_e = 4.5 - 5.6 \text{ nm}$ 、 $l_h/l_e = 0.52 - 0.62$  及電子(電洞)的有效質量為  $m_e^* = 0.05m_0$  ( $m_h^* = 0.5m_0$ )，可以得到一個與實驗趨勢十分吻合的擬合值如圖 4-11(a)(b)所示。

在擬合的過程中，當  $l_e = l_h$  時可以觀察到  $XX$  及  $X^+$  的反磁能移量均與  $X$  反磁能移量相去不遠，與實驗中觀察到隨磁場的增加， $XX$  及  $X^+$  的反磁能移量均慢慢小於  $X$  的反磁能移量相左。由此我們得知當外加磁場後，反磁能移的大小將優先受到電子的影響，因為電子波函數延伸的量較電洞的大。也因此外加磁場對庫侖作用  $V_{ee}$  及  $V_{eh}$  的影響將比  $V_{hh}$  更來的顯著。

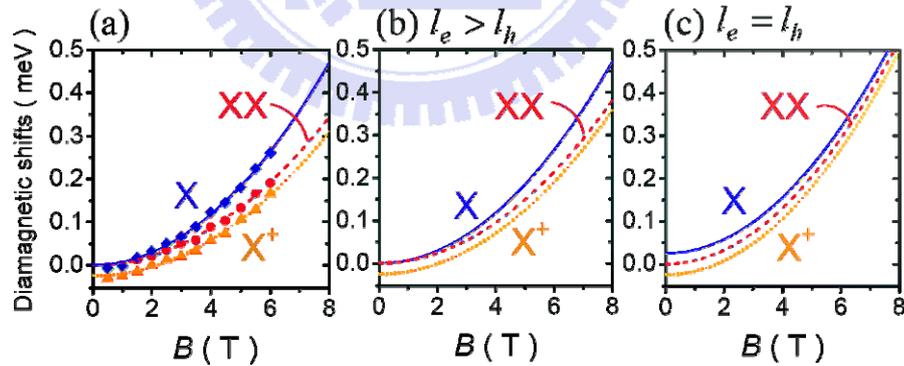


圖 4-11 (a) 實驗中  $X$ 、 $XX$  及  $X^+$  反磁能移隨磁場的變化

(b) 以  $l_e = 4.5 - 5.6 \text{ nm}$  及  $l_h/l_e = 0.52 - 0.62$  所擬合出的反磁能移

(c) 以  $l_e = l_h = 4.5 \text{ nm}$  所擬合出的反磁能移。

在弱磁場的極限下  $\omega_c^\beta \ll \omega_\alpha$ ，而單粒子能量  $\varepsilon_\alpha(B)$  及直接庫侖作用能  $V_{\alpha\alpha'}$  可以被表示如下

$$\varepsilon_\alpha(B) \approx \varepsilon_\alpha(0) + \beta_\alpha^{SP} B^2 + \dots \dots (16)$$

$$V_{\alpha\alpha'}(B) \approx V_{\alpha\alpha'}(0) + \beta_{\alpha\alpha'}^{Coul} B^2 + \dots \dots (17)$$

其中  $\beta_\alpha^{SP} = e^2 l_\alpha^2 / 8m_\alpha^*$  為單粒子的反磁能移係數，及  $\beta_{\alpha\alpha'}^{Coul} = k(l_\alpha^6 + l_{\alpha'}^6) / 2l^3$  為反磁力中由庫侖作用所造成的部分，而當中的常數  $k = (e^2 / 4\pi\epsilon_0\epsilon_r)(e^2 \sqrt{\pi/2} / 16\hbar^2)$ 。

在強侷限的例子中， $\beta_{\alpha\alpha'}^{Coul} (\propto l_\alpha^3)$  通常是被忽略的，所以激子的反磁能移係數為  $\beta_X = (\beta_e^{SP} + \beta_h^{SP}) \approx \beta_e^{SP}$ ，通常會被拿來與波函數的延伸量作為比較 ( $\propto l_\alpha^2$ )。但是當激子所受的侷限效果漸漸減小， $\beta_{\alpha\alpha'}^{Coul}$  的影響將變的不可被忽略，使得激子的反磁能移係數改變為  $\beta_X = (\beta_e^{SP} + \beta_h^{SP}) - \beta_{\alpha\alpha'}^{Coul}$ ，同時包含了單粒子及庫侖作用的影響。

另一方面雙激子的反磁能移係數相對於激子將出現差異量  $\Delta\beta = (\beta_{ee}^{Coul} + \beta_{hh}^{Coul} - 2\beta_{eh}^{Coul})$ ，又因為電子波函數的分布量大於電洞，即  $l_h^3 \ll l_e^3$ ，可以得到  $\beta_{ee}^{Coul} \cong \beta_{eh}^{Coul} \gg \beta_{hh}^{Coul}$ ，使得  $\Delta\beta \cong \beta_{ee}^{Coul}$  及  $\beta_{XX} < \beta_X$ ；同樣的在帶正電的激子上也可以得到相同的差異量。

為了驗證系統在磁場中，受到的庫侖作用影響是否可以被忽略，所以將  $\beta_X + \Delta\beta \approx \beta_e^{SP} \propto l_e^2$  先扣除掉庫侖作用對雙激子及帶正電激子的影響，再以  $\Delta\beta \approx \beta_{ee}^{Coul} \propto l_e^3$  對  $(\beta_X + \Delta\beta)^{3/2}$  作圖，如圖 4-12 所示。

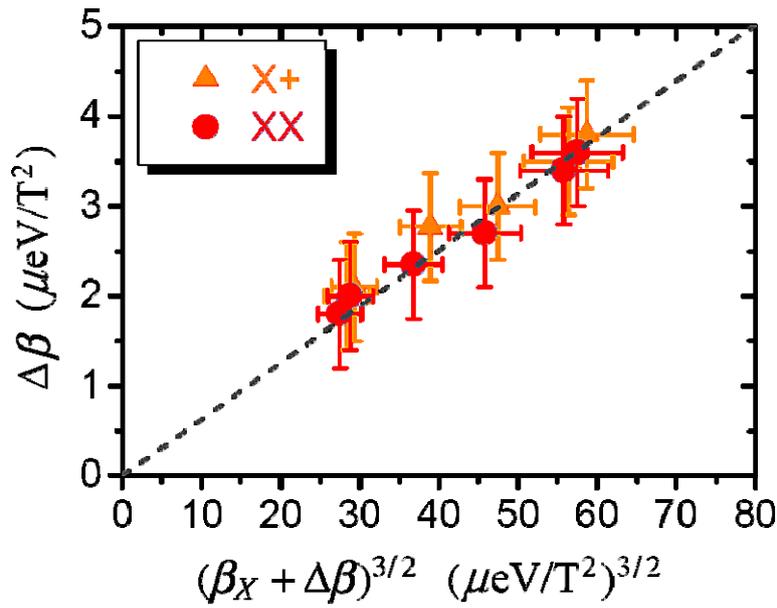


圖 4-12 各量子點中  $XX$  及  $X^+$  分別以  $\Delta\beta$  對  $(\beta_X + \Delta\beta)^{3/2}$  作圖。

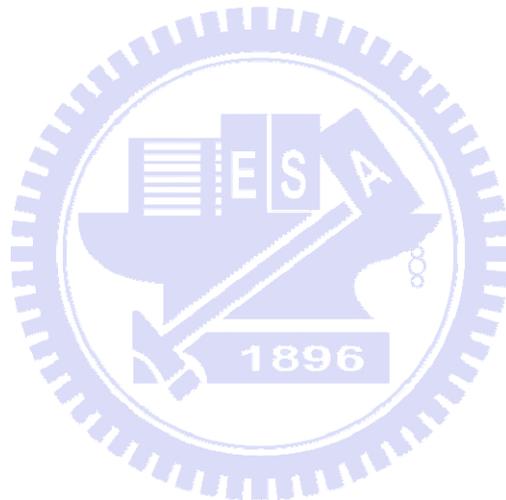
$\Delta\beta$  分別為實驗上所量到  $XX$  及  $X^+$  對  $X$  的反磁能移之差值。

由圖 4-12 可以觀察到不論是雙激子或帶正電激子的  $\Delta\beta$  對  $(\beta_X + \Delta\beta)^{3/2}$  均呈現出線性的關係，因此可以推得該樣品已經屬於庫侖作用無法被忽略的系統。此外利用計算，圖中所表現出的斜率  $\approx k(8m_e^*/e^2)^{3/2}$ ，藉此我們推得  $m_e^* \approx 0.05m_0$ ，比 InAs 塊材 ( $m_e^* \approx 0.023m_0$ ) 及受應力形成的 InAs 島狀物 ( $m_e^* \approx 0.04m_0$ ) 中的電子有效質量都來的大。這是個證據指出電子的波函數已經穿出 InAs 量子點，並受到量子點外圍的覆蓋層影響 ( $m_{e,GaAs}^* \approx 0.067m_0$ )<sup>[18]</sup>。所以圖 4-10 中，尺寸越小的量子點卻觀察到越大的反磁能移，這個趨勢點出了當量子點的尺寸變小，波函數所受到的侷限也漸漸消失，使得波函數也隨之延伸，甚至進入了外圍的覆蓋層。

若考慮  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  的組成，電子的有效質量<sup>[18]</sup>為

$$m_e^* = (0.067 - 0.0419x - 0.00254x^2)m_0 \dots(18)$$

要使電子有效質量達到  $0.05 m_0$ ， $x$  約為 39%，遠超過了 Ga 些微混入了 InAs 量子點中的假設。因此我們可以推得 Ga 原子混入 InAs 量子點並不是影響電子有效質量的主因，而載子的波函數穿出量子點進入覆蓋層，使有效質量受覆蓋層影響。



### (三) 單一 InGaAs 量子點顯微螢光光譜

為了討論載子在不同的量子點中被侷限程度有何不同，這邊我們另外對砷化銦鎵單量子點作了量測及分析，並與砷化銦單量子點作比較。

首先一樣是藉由改變雷射激發功率如圖 4-13，藉由激發功率與訊號強度的關係，我們可以從譜線中區分出激子  $X$  與雙激子  $XX$ 。這邊我們主要以分析激子的訊號為主，因為激子可以表現出較多量子點的特性，所以在磁場垂直通過樣品的螢光光譜中，我們針對激子的訊號做討論，如圖 4-14 所示。

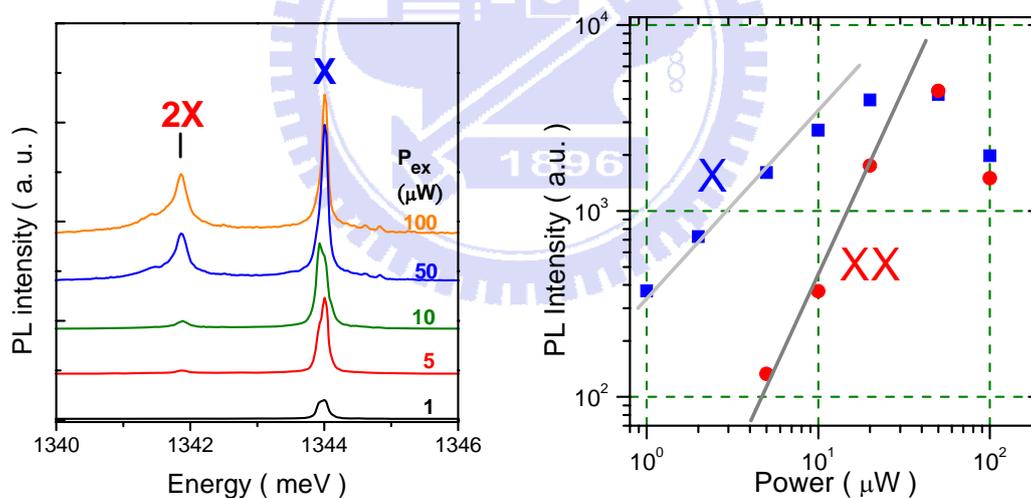


圖 4-13 由變激發功率的螢光光譜，我們可以從砷化銦鎵單量子點譜線上區分出激子與雙激子。

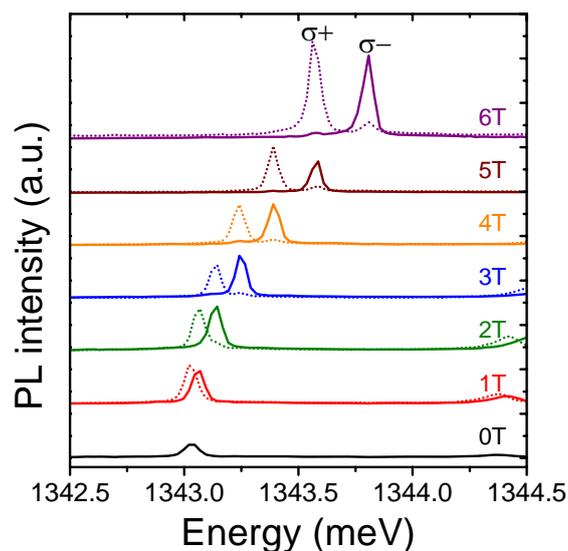


圖 4-14 單砷化銦鎘量子點在磁場中仍可以觀察到相同的現象。

觀察圖 4-14 磁場中激子的螢光光譜，可以發現激子一樣受到了兩種隨磁場而變的效果：Zeeman 效應及反磁能移。

首先對能階分裂量( $E(\sigma^+) - E(\sigma^-)$ )對磁場作圖，如圖4-15所示，擬合出在砷化銦鎘量子點中激子的g 因子為 -0.67，比在砷化銦單量子點中的g 因子 -3.0還小。根據Weidong Sheng 等人的計算<sup>[19]</sup>，電洞的g 因子受到半導體中Bloch functions及封包函數(envelope functions)中的非零角動量影響，這兩項的貢獻互為相反，如圖4-16所示，在高寬比較大的量子點中，非零角動量的貢獻更為明顯，因此能觀察到接近零的g 因子。

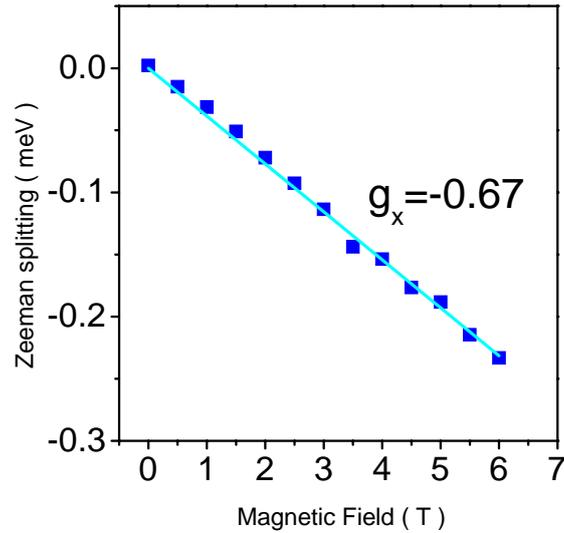


圖 4-15 分析單砷化銦鎵量子點激子能階在磁場中的分裂量，可得到其  $g$  因子比砷化銦量子點得還小。

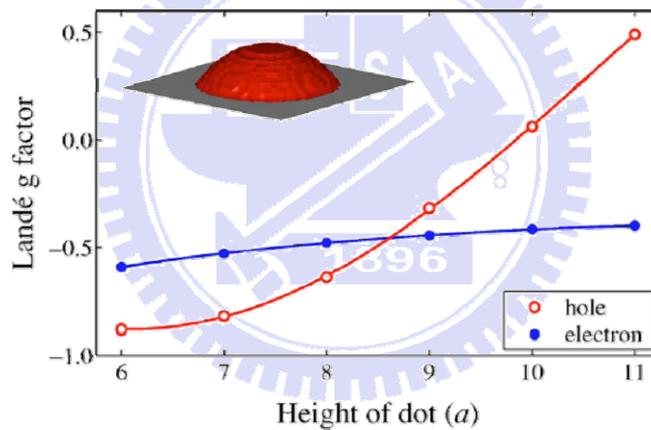


圖 4-16 由 Weidong Sheng 等人的計算<sup>[18]</sup>，隨量子點高度增加，電子及電洞的  $g$  因子也隨著變大。圖中的  $a$  為砷化鎵的晶格常數。

在圖 4-17 中，我們分析了單砷化銦鎵量子點激子中心能量與磁場的關係，發現其中心能量的反磁能移比砷化銦量子點還大。在四-(二)已經探討過反磁能移量可用來估計激子波函數在量子點中的侷限程

度，藍移量越大意味著波函數分布越廣，也表示量子點直徑越大。由於砷化銻鎵量子點與底下的緩衝層砷化鎵的晶格不匹配(Lattice mismatch)程度較低，所以形成的量子點較大。由圖 4-17 穿透式電子顯微鏡(TEM)的影像也可看出，砷化銻鎵量子點的直徑的確比砷化銻量子點來的大。

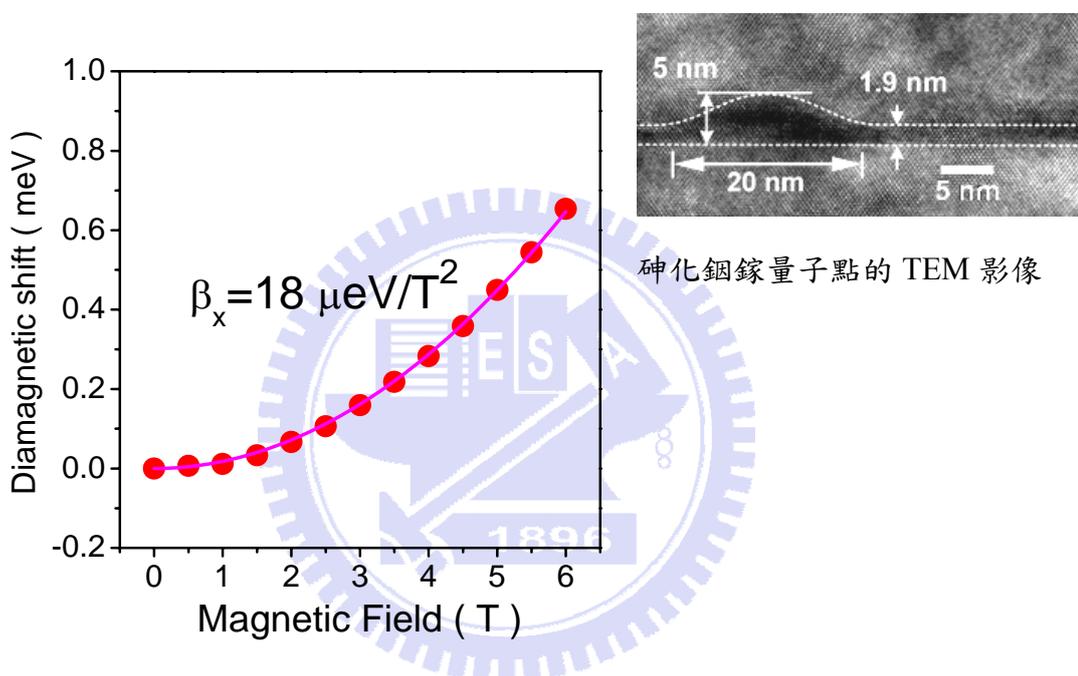


圖 4-17 分析單砷化銻鎵量子點激子訊號在磁場中的藍移量，發現其激子波函數分布較砷化銻量子點中來的廣。所以推測砷化銻鎵量子點尺寸較大，這在穿透式電子顯微鏡的影像中也得到證實。

#### (四) 單一 InGaAs 量子點分子顯微螢光光譜

除了單量子點，我們也研究了垂直耦合量子點分子的光譜特徵，並利用外加磁場探討量子點分子中波函數的分佈情形。這種垂直耦合量子點分子，是利用下層量子點對上層量子點應力的影響，而自然形成垂直堆疊，如圖 4-18 中的 TEM 影像所示。這邊我們選擇兩個量子點間距約為 5 nm。

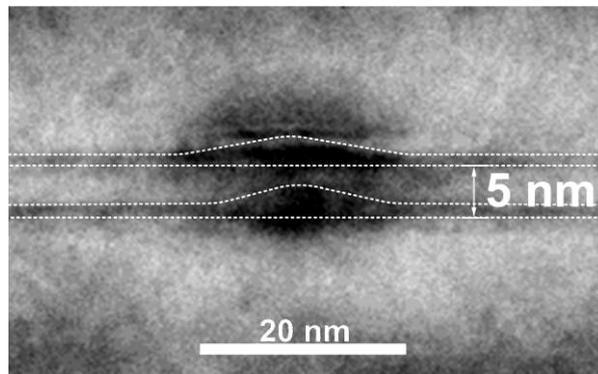


圖 4-18 單一砷化銦鎵垂直耦合量子點分子的 TEM 影像

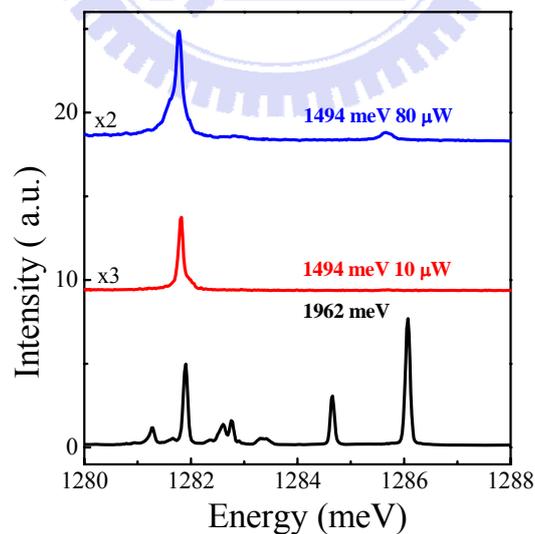


圖 4-19 當激發雷射的能量定在碳授子的能階上，砷化銦鎵垂直耦合量子點分子螢光光譜中三個主要的訊號會只剩下一個，且可以確定為帶負電的激子訊號。

在許多不同的垂直耦合量子點分子螢光光譜中，藉由改變激發功率，可以歸納出幾個在低激發功率時就出現的譜線為激子類。而在圖 4-19 中，我們發現當改變不同激發雷射能量時，原本在低功率會出現的譜線，會只剩下一個。由於砷化銦鎵量子點是以有機金屬化學氣相沉積系統(MOCVD)所成長，成長過程容易有碳元素的混入當作授子(Acceptor)。當激發雷射能量與碳授子的能階相同時，電子及電洞被激發之後，許多電洞會被碳授子所捕獲，而使量子點捕獲的電子數量比電洞數量多，因此傾向形成帶負電的激子( $X^-$ )。如圖 4-19 所示，在激發雷射為 1494 meV 時，三個主要譜線( $X1, X2, X^-$ )中只剩下一個譜線( $X^-$ )留著，因此可以確定此訊號為帶負電激子<sup>[20]</sup>。

圖 4-20 即為幾個不同的單一砷化銦鎵垂直耦合量子點分子螢光訊號。為了觀察譜線相對能量差，我們將譜線以激子( $X1$ )為零點，發現激子( $X1$ )與帶負電激子( $X^-$ )的能量差幾乎不變，約為 4 meV。由先前的討論可知，電中性激子( $X$ )與帶負電的激子( $X^-$ )的能量差主要來自於載子間庫倫作用的差異，若載子分別處在不同量子點中，載子間距離的增加使得彼此間的庫倫作用變弱而被忽略，因此可推測  $X^-$  為  $X1$  的帶負電的激子態，且來自於同一量子點。

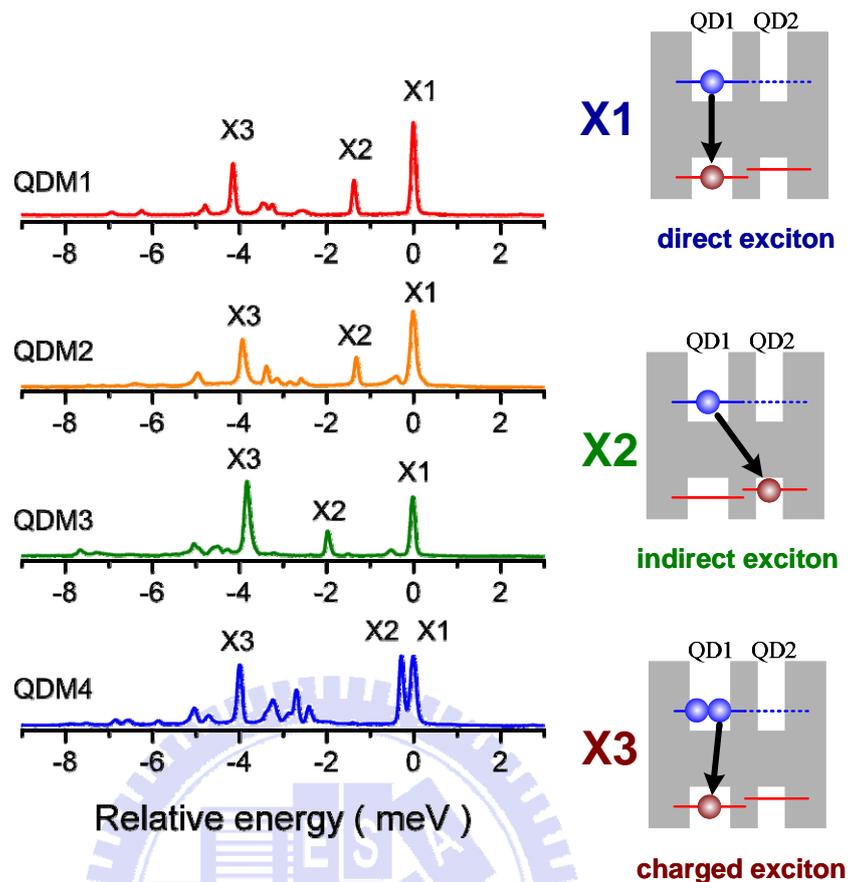


圖 4-20 在幾個不同的砷化銦銻垂直耦合量子點分子螢光光譜中，我們觀察到電中性激子( $X1$ )與帶負電激子( $X^-$ )的能量差幾乎相同。

理論上兩個獨立的量子點靠的夠近，其波函數便會開始耦合，形成能量較低的束縛態 (Bonding state) 及能量較高的反束縛態 (Anti-bonding state)。由於電子的等效質量較小，在兩個量子點不完全相同時，電子容易被侷限在其中一個量子點當中，而電洞則較不受影響。

在圖 4-21 中，為了區分  $X1$ 、 $X2$  是否分別來自不同量子點，因此對量子點分子光譜進行偏振分析。我們發現  $X1$  有出現垂直正交線

偏振的特性，而  $X2$  則沒有。因此我們推測  $X1$  為直接激子(Direct exciton)復合訊號，換言之激子的電子及電洞侷限於同一量子點；而  $X2$  則為間接激子(Indirect exciton)復合訊號，意指激子的電子及電洞分別被侷限在不同的量子點中。間接激子因為電子及電洞在空間中是分開的，波函數的重疊程度也隨之降低，因此無法產生電子—電洞交換作用，所以復合時並不會產生能量分開的正交線偏振譜線。

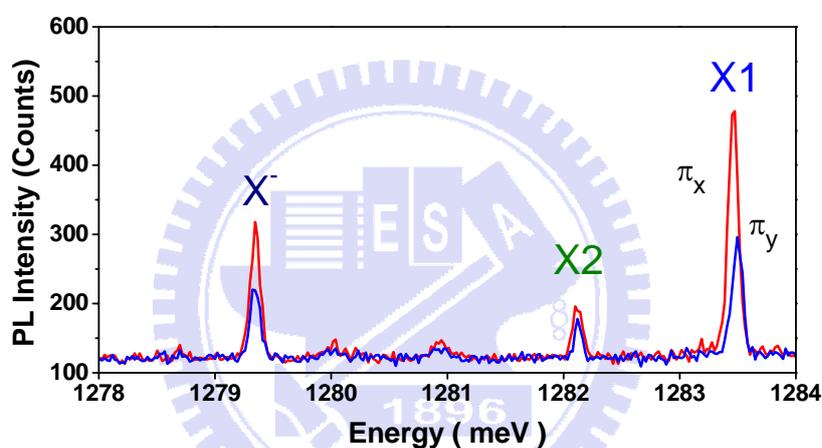


圖 4-21 對單一砷化銻鎘垂直耦合量子點分子螢光光譜做偏振光分析，可以觀察到  $X1$  有正交的線偏振譜線，為一般的直接激子；

(五) 單一量子點分子在磁場下的顯微螢光光譜

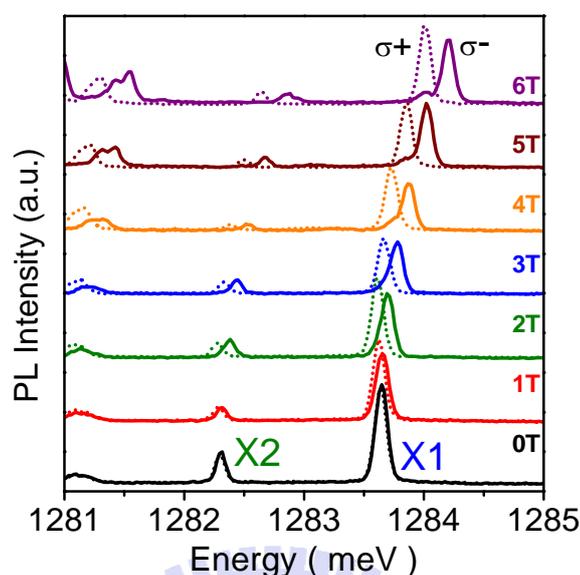


圖 4-22 單一砷化銦鎵垂直耦合量子點分子在垂直磁場當中，直接激子及間接激子都觀察的到藍移及分裂的現象。

為了分析量子點分子中直接激子與間接激子如何被侷限，我們偵測量子點分子在垂直磁場作用下的螢光光譜。由圖 4-22 螢光光譜可發現隨磁場增加，譜線的會產生反磁能移與 Zeeman 分裂，與單量子點相似。

圖 4-23，針對直接激子及間接激子隨磁場的變化，可以分析出兩者的  $g$  因子均約為  $-0.6$ ，而譜線的反磁能移係數  $\beta_{x1}$  約略與  $\beta_{x2}$  相同。由於電子等效質量較電洞小，其反磁能移的效果會比電洞強。此外由量子點分子 TEM 影像可發現上層的量子點形狀較為寬扁，而下層的則較為窄高。若電子是處於上下不同量子點，則反磁能移量也會

有明顯的不同。但在圖 4-23(a)中，我們發現 $\beta$ 的變化量都不大，所以可推測不論是直接激子或間接激子，其電子都被侷限在同一顆量子點。而 $\beta_{x1}$ 、 $\beta_{x2}$ 之間些微的變化量，則可能來自於電洞分別在不同量子點所造成。

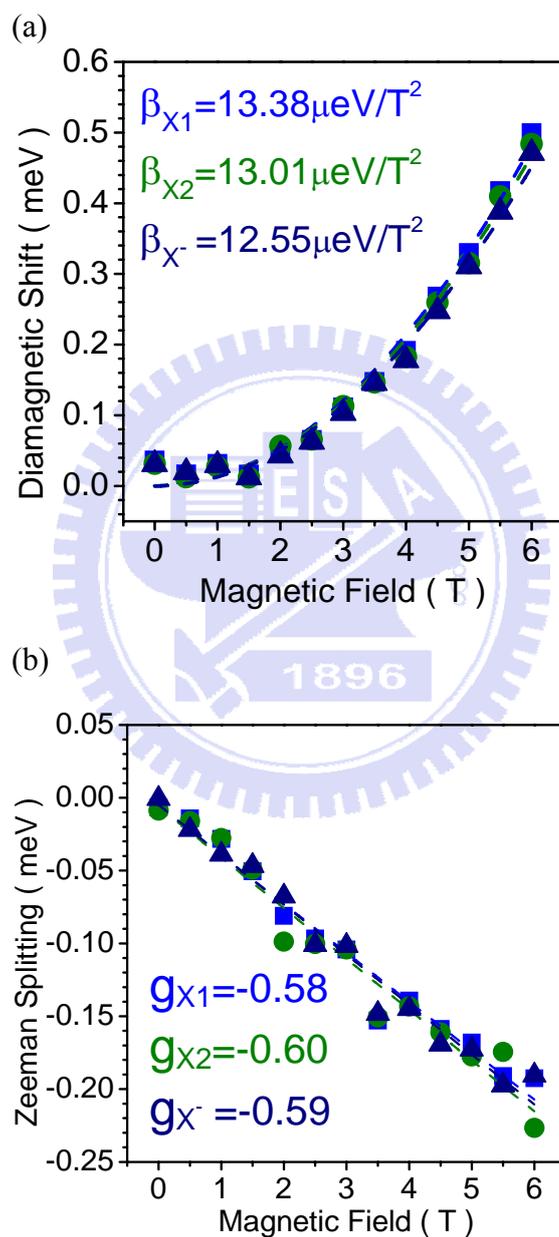


圖 4-23 (a)藉由藍移量對磁場做圖，得到 $\beta_{x1}$ 、 $\beta_{x2}$ 的相差並不大，所以可以得知電子是被侷限在相同量子點當中；(b)藉由分裂量對磁場做圖，發現g 因子差異不大。

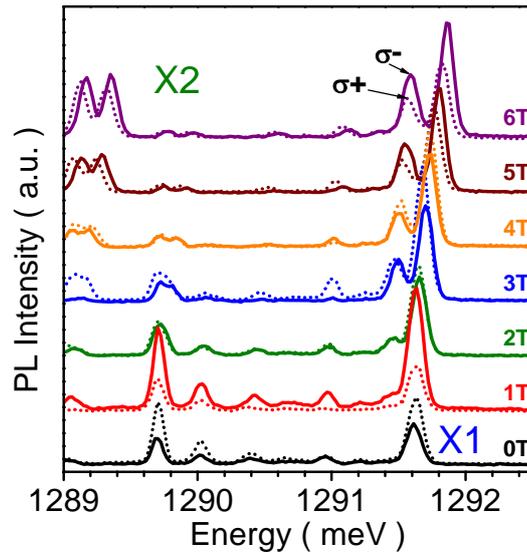


圖 4-24 在量子點分子水平磁場螢光光譜中，觀察到了直接激子( $X1$ )與間接激子( $X2$ )有著不大相同的表現。

為了觀察直接激子及間接激子還有什麼差異，我們進一步量測量子點分子在水平磁場作用下(Voigt configuration)的顯微螢光光譜，如圖 4-24 所示。在水平磁場作用下，我們觀察到激子譜線隨磁場增加而在相差數十  $\mu\text{eV}$  的位置長出其它譜線。若將直接激子及間接激子的譜線能量對外加磁場做圖，如圖 4-25 所示，則可觀察到直接激子譜線隨磁場增加，在低能量處( $\sim 180 \mu\text{eV}$ )會出現另一譜線，且同時可以觀察到其分裂及藍移的現象。而間接激子( $X2$ )則隨磁場的增加而強度不斷變弱，並且在低能量位置並無新的譜線出現。

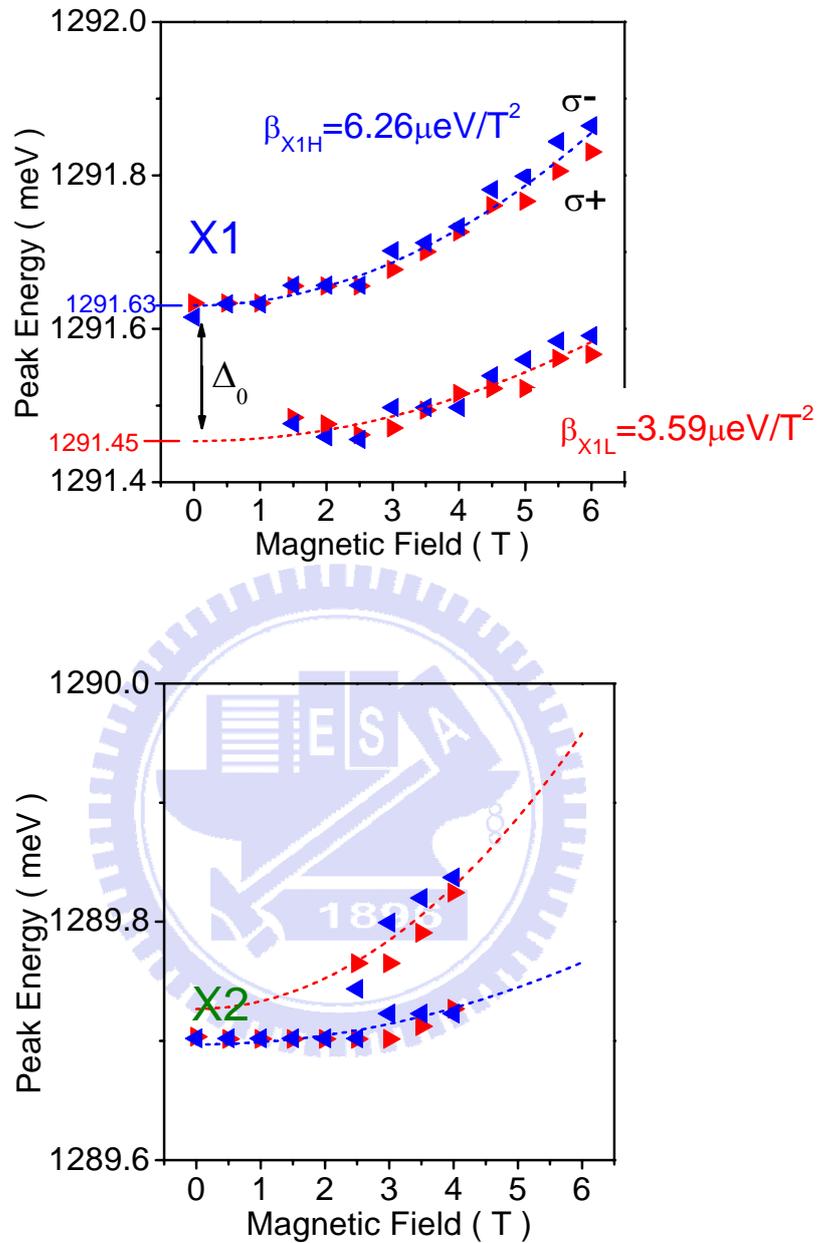
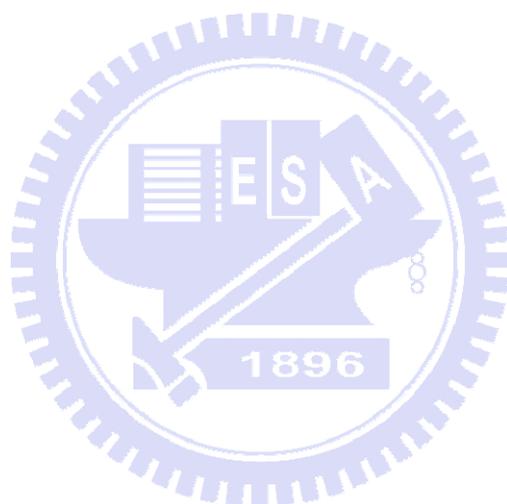


圖 4-25 藉由將量子點分子水平磁場的譜線能量對磁場做圖，我們更清楚看出直接激子(X1)與間接激子(X2)的差異。

M. Bayer 曾對於單量子點中的激子在水平磁場作用下進行一系列的研究<sup>[15]</sup>。其中針對激子的部份，在先前提到不與光子耦合的暗激

子態( $M=\pm 2$ )，會因為水平磁場作用，將 $|+1\rangle$ 、 $|-1\rangle$ 、 $|+2\rangle$ 、 $|-2\rangle$ 四個態混合，而使原本無法與光子耦合的暗激子得以在能量略低於明激子的位置被觀察到。所以由圖 4-25 可推論，直接激子( $X1$ )與單量子點中的激子特性相同，並可藉此定出能量在 1291.63 meV 的譜線為明激子，而能量在 1291.45 meV 的為暗激子的譜線。間接激子則因波函數重疊降低，電子—電洞相互作用也因而降低，因而無法在高磁場中觀察到間接激子訊號。



## 第五章 結論

本論文中，我們以顯微光激螢光光譜技術偵測單一量子點螢光光譜，並藉由改變雷射激發功率、激發能量，及螢光偏振分析，辨別譜線的種類是屬於激子、雙激子、帶正電激子或帶負電激子。在外加磁場的螢光光譜中，藉由激子隨磁場的分裂量及藍移量，可以觀察出不同成分組成的量子點，其量子點大小與對載子侷限量的關係。

這些光譜技術也應用於研究垂直堆疊的量子點分子結構。由螢光光譜的偏振分析及強度與激發功率的關係，可以辨別量子點分子中的直接激子與間接激子躍遷。在垂直磁場作用下，證實電子是被侷限在同一量子點，而電洞則分別侷限於不同量子點。在水平磁場作用下，直接激子與單量子點中的單激子具有相同的特性。明激子與暗激子在外加水平磁場下形成混態，暗激子由不可與光耦合變成可以與光耦合。間接激子則因波函數重疊降低，電子—電洞交互作用也因而降低，因而無法在高磁場中觀察到間接激子訊號。本研究對於量子點中載子侷限、自旋角動量的探討、甚至延伸到量子點分子的載子侷限情形，外加磁場的光激螢光光譜是個直接而有效的研究工具。

## 參考資料：

- [ 1] S. A. Empedocles, R. Neuhauser, K. Shimizu and M. G. Bawendi, *Adv. Mat.* **11**, 1243 (1999).
- [ 2] M. A. Reed, R. T. Bate and M. Duncan, *J. vacuum sci. technol B* **4**, 358(1986).
- [ 3] R. C. Ashoori, H. L. Stormer, J. S. Weiner and L. N. Pfeiffer, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3088 (1992).
- [ 4] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars and P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 3203 (1993).
- [ 5] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel and H. Zbinden, *Rev. Mod. Phys.* **74**, 145(2002).
- [ 6] E. Knill, R. Laflamme and G. J. Milburn, *Nature* **409**, 46 (2001)
- [ 7] P. Chen, C. Piermarocchi and L. J. Sham, *Phys. Rev. Lett* **87**, 067401 (2001)
- [ 8] S. N. Walck and T. L. Reinecke, *Phys. Rev. B* **57**, 9088(1998).
- [ 9] M. Bayer, S. N. Walck, T. L. Reinecke and A. Forchel, *Phys. Rev. B* **57**, 6584 (1998).
- [10] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer and D. Park, *Science* **273**, 87 (1996).
- [11] M. Bayer and A. Forchel, *Phys. Rev. B* **65**, 041308 (2002).
- [12] A. Zrenner, E. Beham, S. Stufler, F. Findeis, M. Bichler and G. Abstreiter, *Nature* **418**, 612 (2002).
- [13] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider and U. Woggon, *Phys. Rev. B* **66**, 081306R (2002).
- [14] E. L. Ivchenko and P. Pikus. *Superlattices and other heterostructures. Springer, Berlin(1997).*
- [15] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kurth, A. A. Gorbunov and A. Forchel, *Phys. Rev. B* **65**, 195315 (2002).
- [16] D. V. Regelman, E. Dekel, D. Gershoni and E. Ehrenfreund,

- Phys. Rev. B **64**, 165301 (2001).
- [17] S.-J. Cheng, W. Sheng, and P. Hawrylak, Phys. Rev. B **68**, 235330 (2003).
- [18] O. Stier, M. Grundmann, and D. Bimberg, Phys. Rev. B **59**, 5688 (1999).
- [19] W. Sheng and A. Babinski, Phys. Rev. B **75**, 033316 (2007)
- [20] 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).

