

國立交通大學

電子物理研究所

碩士論文

砷化銦/砷化鎵微碟共振腔之光學特性研究



**Optical Properties of InAs/GaAs Microdisk  
Microcavities**

研究生：張志豪

指導教授：張文豪 教授

中華民國九十八年八月

砷化銦/砷化鎵微碟共振腔之光學特性研究

Optical properties of InAs/GaAs microdisk microcavities

研究生:張志豪

Student: Chih-Hao Chang

指導教授:張文豪

Advisor: Wen-Hao Chang



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 2009

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十八年八月

# 砷化銦/砷化鎵微碟共振腔之光學特性研究

研究生：張志豪

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

本論文探討由砷化銦量子點作為發光主動層之微碟共振腔螢光光譜。藉由顯微光激螢光光譜，分析不同直徑之微碟共振腔譜線，可辨別出其為耳語廊模態。透過解析解近似法的計算與三維有限時域差分法的模擬，我們可正確標示出實驗量測耳語廊模態之方位角與徑向模態數。激發光強度對譜線的影響與品質因子分析也將一併討論。由時間解析光譜量測結果，我們觀察到室溫下量子點之自發性輻射率受到量子點與共振腔之弱耦合效應而提升。透過顯微光激螢光技術對微碟共振腔之空間解析光譜量測，發現了不同模態數的耳語廊模態，其空間上有方向性的螢光強度分佈。使用近場顯微光學技術，則可觀察到微碟共振腔表面耳語廊模態的場型分佈與模態數。

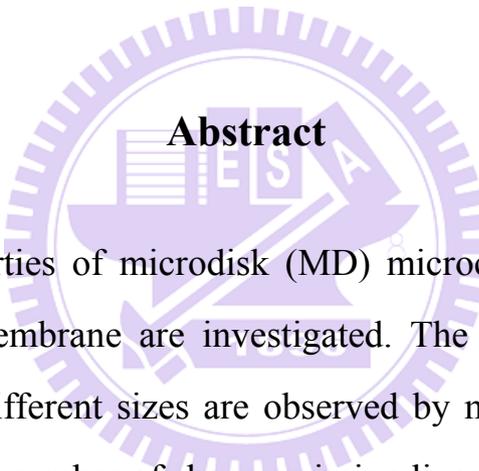
# Optical properties of InAs/GaAs microdisk microcavities

Student : Chih-Hao Chang

Advisor : Dr. Wen-Hao Chang

Institute of Electrophysics

National Chiao Tung University



## Abstract

The optical properties of microdisk (MD) microcavities with embedding InAs QDs in GaAs membrane are investigated. The emission spectra of the MD microcavities of different sizes are observed by micro-photoluminescence ( $\mu$ PL) measurements. A number of shape emission lines have been characterized as the whispering-gallery modes (WGMs). Analytic approximation method and three-dimensional finite-difference time-domain (3D-FDTD) simulations are used to identify the azimuthal and radial mode numbers of the measured WGMs. Power dependent and time-resolved  $\mu$ PL measurements have also been performed and discussed. Spontaneous emission enhancement is observed at room temperature, which is attributed the weak coupling regime. Directional radiation patterns are observed by  $\mu$ PL intensity mapping contour plots. Near-field resonance patterns of different WGMs measured by scanning near-field optical microscopy (SNOM) technique are also presented.

## 誌謝

在交大校園的研究所生活，轉眼間即將邁入尾聲。接下來又是另一段旅程的開始，期望自己能增廣視野、精益求精，更上層樓。

首先感謝，我的指導教授 張文豪老師在學術研究上嚴謹的指導與應有態度的教誨。感謝 李明知老師的共同指導，提供了許多的建議與思考問題的方向。感謝 鄭舜仁老師帶領我初踏入半導體固態量子物理的領域，及理論研究方面的訓練。另外感謝口試委員們提供寶貴的意見，使我獲益匪淺。

謝謝林萱學姊在研究上的意見與討論，以及日常生活的鼓勵與陪伴。還有儀哲、昱安以及書楷學長，適度給予關懷與建言，衷心的感謝各位學長姐們。謝謝阿賢和老王的陪伴與在實驗上的許多討論，很高興能認識你們。由威宇、大雄、阿彰和我組成的四賤客，我們一起互相砥礪完成了學業，跟你們在一起很歡樂，也增添了許多搞笑的回憶。志彬、彥廷和上瑜，懷念與你們一起生活的日子，很榮幸能與你們共事過。阿龐、士興、家和、(小)志豪、小周和酥魚，你們真是一群很 nice 的學弟妹，也多謝你們平日的幫忙。另外感謝我的幾位摯友，低潮時你們是我最好的心情轉換機。

最後，我要感謝二十多年來始終給我支持的父母與最愛的家人們，謝謝你們支持我想做的事與包容我的個性。本論文需藉多人之力始能完成，在此真摯感謝幫助過我的所有人。

# 目錄

中文摘要.....	I
英文摘要.....	II
誌謝.....	III
目錄.....	IV
圖目錄.....	VI
<b>第一章 導論.....</b>	<b>1</b>
<b>第二章 共振模態理論分析與模擬方法.....</b>	<b>3</b>
2-1 解析近似法.....	3
2-2 共振模態分析.....	8
2-3 三維有限時域差分法.....	15
<b>第三章 微碟共振腔製備與量測實驗架構.....</b>	<b>18</b>
3-1 量子點主動層結構.....	18
3-2 微碟共振腔製作流程.....	19
3-3 顯微光激螢光光譜實驗架構.....	21
3-4 顯微光激螢光光譜空間解析實驗架構.....	23
<b>第四章 實驗結果與討論.....</b>	<b>24</b>
4-1 微碟共振腔之譜線特徵.....	24
4-1-1 不同直徑微碟共振腔之模態.....	24
4-1-2 激發光強度對譜線的影響.....	31

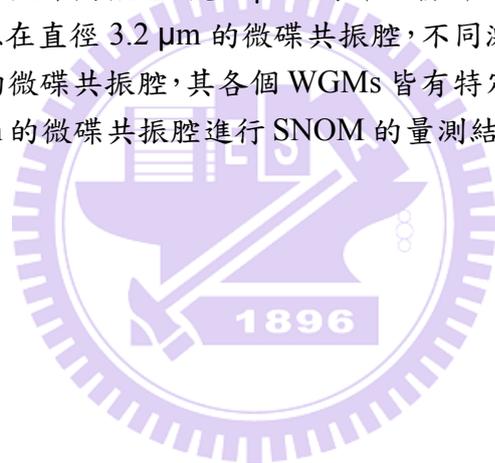
4-1-3	Q 值分析.....	39
4-1-4	時間解析顯微光激螢光光譜.....	41
4-2	空間解析量測.....	44
4-2-1	$\mu$ PL 之空間解析.....	44
4-2-2	SNOM 之空間解析.....	49
第五章 結論.....		51
參考文獻.....		52



# 圖目錄

【圖 1-1】 WGMs 在微碟共振腔內的行徑示意圖與場型分佈圖.....	1
【圖 2-1】 空氣-介質-空氣 三層結構以及電場示意圖.....	5
【圖 2-2】 存在於微碟共振腔內的三種主要傳播模態示意圖.....	8
【圖 2-3】 有效折射率 $n_{eff}$ 與微碟共振腔厚度 $d$ 之關係圖.....	10
【圖 2-4】 直徑 $2\ \mu\text{m}$ 的微碟共振腔 (a)WGMs 波長與其對應的模態數關係 (b)(c) $\text{TE}_{9,1}$ 和 $\text{TE}_{6,2}$ 模態的平面電場分佈 (d)模態的有效半徑與徑向模態數的關係.....	12
【圖 2-5】 由解析近似法得到 WGMs 能量間距與直徑倒數的關係圖.....	14
【圖 2-6】 由解析近似法計算不同直徑的微碟共振腔與其 WGMs 的波長關係圖.....	14
【圖 2-7】 3D-FDTD 模擬直徑 $2\ \mu\text{m}$ 微碟共振腔的結果.....	15
【圖 2-8】 3D-FDTD 模擬直徑 $2$ 到 $2.8\ \mu\text{m}$ 微碟共振腔的譜圖.....	16
【圖 2-9】 使用 3D-FDTD 與解析近似法，計算模態能量間距與微碟直徑倒數的比較圖.....	17
【圖 3-1】 砷化銦量子點結構示意圖.....	18
【圖 3-2】 微碟共振腔各階段製作流程示意圖.....	20
【圖 3-3】 微碟共振腔的 SEM 影像.....	20
【圖 3-4】 顯微光激螢光( $\mu\text{PL}$ )系統架構圖.....	22
【圖 3-5】 $\mu\text{PL}$ 的光譜解析.....	22
【圖 3-6】 $\mu\text{PL}$ 空間解析的量測架構圖.....	23
【圖 4-1】 室溫下，(a)砷化銦量子點以及 (b)直徑 $2\ \mu\text{m}$ 的微碟共振腔所量測之顯微光激螢光光譜.....	25
【圖 4-2】 針對不同直徑大小的微碟共振腔所量測之顯微光激螢光光譜.....	26
【圖 4-3】 WGMs 能量間距( $\Delta E$ )對直徑倒數( $1/D$ )的關係圖.....	27
【圖 4-4】 直徑 $2\ \mu\text{m}$ 的微碟共振腔，實驗與 3D-FDTD 的模擬譜圖.....	28
【圖 4-5】 實驗與模擬，針對不同直徑的微碟共振腔與其共振波長的比較圖.....	29
【圖 4-6】 (a)直徑為 $2\ \mu\text{m}$ 微碟共振腔之顯微光激螢光光譜，(b) (c) (d)分別為方位角模態數 $m=11$ 、 $10$ 和 $9$ 的 WGMs 放大圖，S 和 L-mode 表示較短波長和較長波長的模態.....	30
【圖 4-7】 直徑為 $2.1\ \mu\text{m}$ 的微碟共振腔，隨著激發功率改變，螢光譜線的變化情形 (a) 隨著激發功率增加，WGMs 的螢光強度增加 (b)將 $\text{TE}_{11,1}$ 的 WGMs 放大來看，可發現模態有明顯紅移的現象.....	31
【圖 4-8】 直徑 $2.1\ \mu\text{m}$ 的微碟共振腔所量測的 PL 強度對激發功率關係圖.....	32

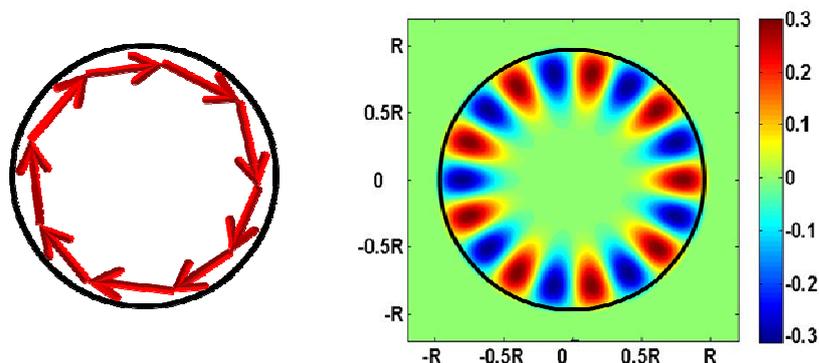
【圖 4-9】顯示了隨著雷射激發功率的增加，WGMs 會有紅移效應.....	33
【圖 4-10】WGMs 半高寬會隨著雷射激發功率的增加而減少.....	35
【圖 4-11】使用脈衝雷射當激發光源，量測不同激發功率下，直徑 2.1 $\mu\text{m}$ 微碟的螢光 譜線.....	36
【圖 4-12】使用脈衝雷射當激發光源，量測 $\text{TE}_{11,1}$ 的 WGMs 在不同激發功率下的實驗 結果.....	37
【圖 4-13】使用脈衝雷射當激發光源，量測 $\text{TE}_{12,1}$ 的 WGMs 在不同激發功率下的實驗 結果.....	38
【圖 4-14】室溫下，量測到最高 Q 值(~6600)的 WGMs.....	40
【圖 4-15】直徑 2.1 $\mu\text{m}$ 的微碟共振腔，顯示位於 1318 nm 為 $\text{TE}_{10,1}$ 且 Q~5700 的 WGMs...	41
【圖 4-16】微碟共振腔的 WGMs，其時間解析光譜的量測結果.....	42
【圖 4-17】直徑 3.2 $\mu\text{m}$ 的微碟共振腔，使用 $\mu\text{PL}$ 局部激發所映製出的實驗結果.....	45
【圖 4-18】雷射激發光源在直徑 3.2 $\mu\text{m}$ 的微碟共振腔，不同激發位置時的 $\mu\text{PL}$ 光譜..	47
【圖 4-19】直徑 3.2 $\mu\text{m}$ 的微碟共振腔，其各個 WGMs 皆有特定方向的螢光強度分佈..	48
【圖 4-20】對直徑 2.6 $\mu\text{m}$ 的微碟共振腔進行 SNOM 的量測結果.....	50



# 第一章 導論

最近幾年，半導體微奈米共振腔引起許多研究群高度的興趣。尤其是微柱 (micropillar)、微碟 (microdisk) 和光子晶體 (photonic crystal) 等微奈米共振腔，都已被廣泛的研究及應用。對於微碟共振腔，由於其圓形幾何結構，光可經由內部全反射而繞著微碟的圓周傳播，形成所謂的耳語廊模態 (whispering-gallery modes, WGMs)，如圖 1-1 所示。由於 WGMs 擁有高品質因子(Q)與低模態體積(V)，加上微碟上下層由低折射率介質包覆，折射率差異極大，因此可將光場有效的侷限在腔體內。

若以不同組成的半導體合金當作發光主動層，微碟共振腔的發光波段可涵蓋紫光到近紅外光( $0.4\sim 1.6\ \mu\text{m}$ )<sup>1-3</sup>。1991 年貝爾實驗室 S.L. McCall 等人<sup>4</sup>使用多層砷化鎵量子井當主動層，成功的製作出第一個微碟共振腔雷



【圖 1-1】WGMs 在微碟共振腔內的行徑示意圖與場型分佈圖

射。然而以量子井當發光主動層，會有嚴重的表面複合現象，影響發出雷射光的臨界強度。此外，以量子井為主動層通常只能觀察到極少數的模態，主要是因量子井的頻譜增益寬度小於模態的能量間距所導致。近年來，許多研究開始以量子點作為發光主動層，其優勢在於量子點具有較低的吸收率，因此對於共振腔的 Q 值影響不大。由於量子點的大小分佈不均勻，可提供共振腔一個寬頻的光源，使得我們可以在發光波段內觀察到許多模態。微碟共振腔在許多領域都有廣泛的應用，在元件方面包括低臨界雷射<sup>5</sup>等；在量子領域研究方面則有單光子源<sup>6</sup>、強耦合系統<sup>7</sup>、提升或抑制自發性輻射率<sup>8</sup>效應等。

本論文中所研究的微碟共振腔，是以砷化銦量子點作為發光主動層，其室溫發光波長為 1.3  $\mu\text{m}$ ，適合光纖通訊波段的應用。章節架構大致如下所述：第二章說明使用兩種理論模擬來達到模態預測，包含解析近似法與三維有限時域差分法；第三章簡短的描述微碟共振腔的製作流程和量測技術；第四章為實驗結果與討論，涵蓋本研究使用的顯微光激螢光光譜技術，微碟共振腔的光譜特性、空間解析與時間解析的探討；第五章為本論文的結論。

## 第二章 共振模態理論分析與模擬方法

本章節將引入半導體微碟共振腔計算共振模態和電場分佈等所使用的方法。主要有二，分別是解析近似法( analytic approximation method )和三維有限時域差分法( finite-difference time-domain method , 3D-FDTD )。解析近似法是求解空間中與時間無關電磁場的馬克斯威爾方程(Maxwell's equations)，並將空間維度由三維簡化到二維結構計算，此計算需引入有效折射率(effective refractive index,  $n_{\text{eff}}$ )的觀念，以減少計算所帶來的誤差。且由於其時間項已屏除，雖然電磁場在空間中的分佈和共振模態均可求得，但卻無法提供電磁場或能量隨時間變化和傳播等資訊；然而三維有限時域差分法正好彌補了此不足之處，再者，解析近似法告訴我們共振模態擁有雙重簡併的特性，然而這是在使用 3D-FDTD 模擬模態時無法得知的資訊，故我們使用解析近似法配合 3D-FDTD 模擬，以達到精確的共振模態預測。

### 2-1 解析近似法<sup>9-11</sup>

在一沒有自由電荷或電流存在的介質中，馬克斯威爾方程式可以寫成：

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \vec{D}(\vec{r}, t) = 0 & \quad \nabla \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{\partial \vec{B}(\vec{r}, t)}{\partial t} \\ \nabla \cdot \vec{B}(\vec{r}, t) = 0 & \quad \nabla \times \vec{H}(\vec{r}, t) = -\frac{\partial \vec{D}(\vec{r}, t)}{\partial t} \end{aligned} \quad (2.1)$$

假設此介質是線性且非散射的， $\vec{D}(\vec{r},t) = \varepsilon(\vec{r})\vec{E}(\vec{r},t)$ 、 $\vec{H}(\vec{r},t) = \frac{1}{\mu}\vec{B}(\vec{r},t)$ 。式(2.1)

整理過後可得波方程符合下式：

$$\nabla^2 \vec{F} - \frac{n^2(\vec{r})}{c^2} \frac{\partial \vec{F}}{\partial t^2} = 0 \quad , \quad (2.2)$$

其中波函數為 $\vec{F} = \{\vec{E}, \vec{H}\}$ 、 $c = \sqrt{\frac{1}{\mu \varepsilon_0}}$ 、且 $n(\vec{r}) = \left(\frac{\varepsilon(\vec{r})}{\varepsilon_0}\right)^{1/2}$ 為材料折射率，且 $\varepsilon$ 和

$\mu$ 分別表示材料中的介電常數和磁導率(在大部分的物質中 $\mu \approx \mu_0$ )。接著為

了將 $\vec{F}(\vec{r},t)$ 表示成空間與時間之獨立項，假設 $\vec{F}(\vec{r},t)$ 為隨著時間震盪之函

數，因此波函數可表示為：

$$\vec{F}(\vec{r},t) = \vec{F}(\vec{r}) \exp(-i\omega t) \quad , \quad (2.3)$$

其中 $\omega$ 為共振頻率。將式(2.3)帶回式(2.2)且轉換到圓柱座標空間，故式(2.2)

可寫成與時間獨立的形式：

$$\left[ \frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 n^2(\vec{r}) \right] \vec{F}(\vec{r}) = 0 \quad , \quad (2.4)$$

利用變數分離法解上式，假設 $F_z = W(\rho, \phi)Z(z)$ ，且 $k_0 = \frac{\omega}{c}$ ，帶回上式後可寫

成：

$$\frac{1}{W} \left( \frac{\partial^2 W}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial W}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2 W}{\partial \phi^2} \right) + \frac{1}{Z} \frac{\partial^2 Z}{\partial z^2} + k_0^2 n^2(\vec{r}) = 0 \quad , \quad (2.5)$$

因此可得到兩個微分方程式：

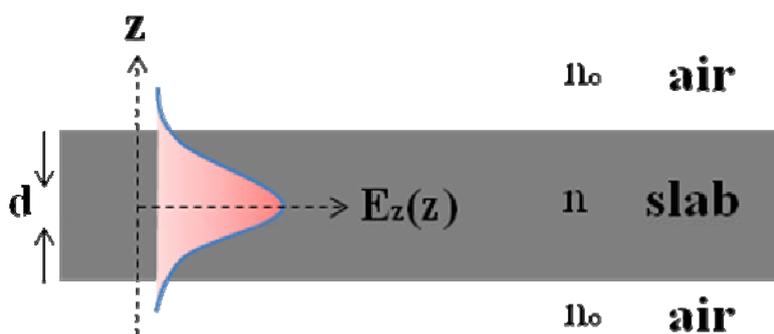
$$\left( \frac{\partial^2 W}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial W}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2 W}{\partial \phi^2} \right) + k_0^2 n_{\text{eff}}^2 W = 0 \quad , \quad (2.6)$$

$$\frac{d^2 Z}{dz^2} + k_0^2 (n^2(z) - n_{\text{eff}}^2) Z = 0 \quad , \quad (2.7)$$

其中  $n_{\text{eff}}$  為材料之有效折射率。這裡為了將空間維度由三維簡化到二維結構計算，因此引入有效折射率的觀念，也就是將「空氣-介質-空氣」三層異質結構，假想為單一折射率材質。接下來我們將討論有效折射率的計算。式(2.7)如同解標準薄板波導的模態結構，如圖 2-1 所示，薄板厚度為  $d$ ，介質折射率  $n$ ，上下兩層為空氣層(折射率  $n_0$ )，經計算後其解整理如下：

$$Z(z) = E_z(z) = \begin{cases} E_0 \cos(k_z z - p \frac{\pi}{2}) & |z| \leq \frac{d}{2} \\ E_1 \exp(-\alpha z) & z > \frac{d}{2} \\ E_2 \exp(\alpha z) & z < -\frac{d}{2} \end{cases}, \quad (2.8)$$

其中  $k_z = k_0(n^2 - n_{\text{eff}}^2)^{1/2}$ ， $p$  為平面模態數(planar mode number)。因薄板波導主要的傳輸模態是基模，故我們只討論  $p=0$  的情況。由上式可知電磁波在薄板上下方會以指數衰減形式向空氣層延伸，衰減係數  $\alpha = k_0(n_{\text{eff}}^2 - n_0^2)^{1/2}$ 。



【圖 2-1】空氣-介質-空氣三層結構以及電場示意圖

考慮如圖 2-1 的三層結構，薄板的折射率  $n$  大於外界(空氣層)的折射  $n_0$ ，使得電磁波得以在薄板內傳播。假設薄板厚度為  $d$  且原點位於薄板中心。由式(2.8)並使用邊界條件，即在界面處( $z = \pm \frac{d}{2}$ )電場及其一階導數之連續性，當  $z = \frac{d}{2}$  時代入：

$$E_0 \cos(k_z \frac{d}{2}) = E_1 \exp(-\alpha \frac{d}{2}) \quad , \quad (2.9)$$

$$E_0 k_z \sin(k_z \frac{d}{2}) = E_1 \alpha \exp(-\alpha \frac{d}{2}) \quad 。 \quad (2.10)$$

將式(2.10)除以式(2.9)並整理後得：

$$k_z \frac{d}{2} = \tan^{-1}\left(\frac{\alpha}{k_z}\right) + p \frac{\pi}{2} \quad , \quad (2.11)$$

接著代入  $k_z$  和  $\alpha$  至上式，最後得到下列方程式：

$$\frac{k_0 d}{2} (n^2 - n_{\text{eff}}^2)^{1/2} = \tan^{-1} \left[ \frac{(n_{\text{eff}}^2 - n_0^2)}{(n^2 - n_{\text{eff}}^2)} \right]^{1/2} + p \frac{\pi}{2} \quad 。 \quad (2.12)$$

上式即為薄板厚度與有效折射率之關係式。因  $k_0 = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}$ ，對於不同的共振波長有相對應的  $k_0$ ，故有效折射率也為波長的函數  $n_{\text{eff}}(\lambda)$ 。

接著繼續解式(2.6)，再次使用變數分離法，使得  $W(\rho, \phi) = \psi(\rho)\Omega(\phi)$

，帶回式(2.6)後重寫可得：

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial \psi}{\partial \rho} + \left( k_0^2 n_{\text{eff}}^2 - \frac{m^2}{\rho^2} \right) \psi = 0 \quad , \quad (2.13)$$

$$\frac{\partial^2 \Omega}{\partial \phi^2} + m^2 \Omega = 0 \quad 。 \quad (2.14)$$

解式(2.14)可得  $\Omega(\phi) = C_0 \exp(\pm im\phi)$ ，其中  $C_0$  是常數、 $m$  稱為方位角模態數

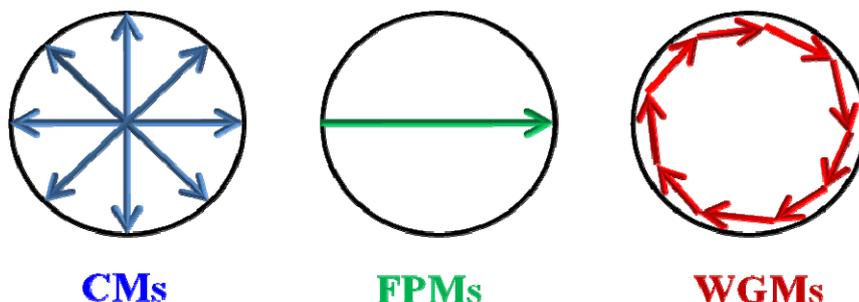
(azimuthal mode number,  $m > 0$ )。由式(2.13)知，當給定一  $m$  值時則有相對應之共振波長  $\lambda_m$ 。由於圓柱對稱，所以  $\lambda_m = \lambda_{-m}$ ，故對於每一個模態皆會有二重簡併(twofold degeneracy)解的存在。式(2.13)為徑向的解，若  $R$  為微碟共振腔之半徑，則在微碟共振腔內部( $\rho \leq R$ )，其解為第一類貝索函數(Bessel function of the first kind)， $\psi(\rho) \sim J_m(k_0 n_{\text{eff}} \rho)$ ；而在外部( $\rho > R$ )則為漢克函數(Hankel function)，可用單一指數衰減函數來近似，其衰減係數  $\alpha = k_0(n_{\text{eff}}^2 - n_0^2)^{1/2}$ ，整理如下：

$$\psi(\rho) = \begin{cases} C_1 J_m(k_0 n_{\text{eff}} \rho) & \rho \leq R \\ C_2 J_m(k_0 n_{\text{eff}} R) \exp(-\alpha(\rho - R)) & \rho > R \end{cases}, \quad (2.10)$$

其中  $C_1$  和  $C_2$  為常數。故在微碟外部，電磁波會以消散波(evanescent wave)的形式向空氣層延伸出去。

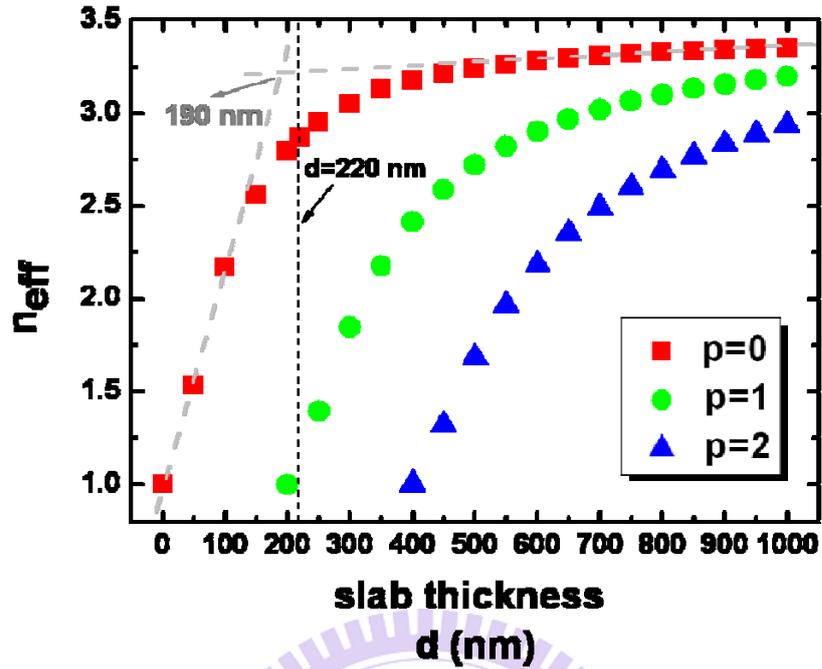
## 2-2 共振模態分析

半導體微碟共振腔主要是藉由高折射率材料與周圍低折射率介質之不連續性，經由內部全反射將電磁波侷限在共振腔內。依模態的在腔體內的行徑模式可分為三類<sup>12</sup>，分別是侷限模態(confined modes, CMs)、法布里-伯羅模態(Fabry-Perot modes, FPMs)和耳語廊模態(WGMs)，如圖 2-2 所示。而在微碟共振腔主要的行進模態是 WGMs，也就是在微碟圓周內部環繞的模態。對於每一個 WGM 可用三個模態數<sup>13</sup>來表示：方位角模態數( $m$ )，表示在微碟周圍形成幾個共振波長；徑向模態數(radial mode number,  $\ell$ )，說明了沿半徑方向有幾個極大值；而平面模態數( $p$ )是指在垂直微碟平面方向共振模態的節點數。基於上述，若給定一橫向電場模態(transverse electric mode, TE)，即電場方向平行微碟表面，我們可表示成  $TE_{m,\ell,p}$ 。文獻指出當微碟共振腔的薄板厚度  $d$  接近  $\lambda/2n$  時，波導將只支持最低階模態( $p=0$ )的傳輸<sup>4</sup>，故一般將  $TE_{m,\ell,p=0}$  表示成  $TE_{m,\ell}$ ；同理橫向磁場模態(transverse magnetic mode, TM)，即電場方向垂直微碟表面，可表示成  $TM_{m,\ell}$ 。



【圖 2-2】存在於微碟共振腔內的三種主要傳播模態示意圖

對於微碟共振腔之共振模態波長，可經由解析近似法得到。首先計算有效折射率( $n_{\text{eff}}$ )的效應，將微碟共振腔之結構參數帶入式(2.12)，砷化鎵(GaAs)塊材的折射率  $n=3.4$ 、空氣折射率  $n_0=1$ ，且將共振波長定在 1300 nm。計算結果顯示於圖 2-3，圖中分別表示了三種平面模態數( $p=0、1、2$ )時的  $n_{\text{eff}}$  與微碟共振腔厚度  $d$  的關係。這裡主要集中在基模( $p=0$ )時的情況，由圖中可知若共振腔薄板厚度較大( $d > 190 \text{ nm}$ ) 時，有效折射率趨近砷化鎵塊材之折射率 3.4；而當共振腔薄板厚度小於 190 nm 時，隨著厚度越小，有效折射率遽減且趨近空氣之折射率 1。在我們所製備的微碟共振腔樣品，其薄板厚度由 SEM 影像估計約為 220 nm，計算出在此厚度下折射率已非原本塊材的 3.4，而是向下修正到 2.87。圖中也說明了當厚度分別大於 200 和 400 nm 時， $p=1$  和 2 的模態會開始出現。



【圖 2-3】有效折射率  $n_{eff}$  與微碟共振腔厚度  $d$  之關係圖

接著計算共振波長，由 2-1 節知電場在微碟共振腔內的平面場形分佈

為：

$$W(\rho, \phi) \sim J_m(x) \exp(im\phi), \quad (2.16)$$

其中  $x = k_0 n_{eff} \rho$  且  $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$ ，為了求得共振波長  $\lambda$ ，我們考慮邊界條件當  $\rho = R$  時

$W(\rho, \phi) = 0$ ，也就解貝索函數為零 ( $J_m(x) = 0$ ) 的點。給定一方位角模態數  $m$ ，

可得對應之  $x_m$ ，最後便可求得 WGMs 的共振波長  $\lambda_m$ 。不同的零點代表不同的

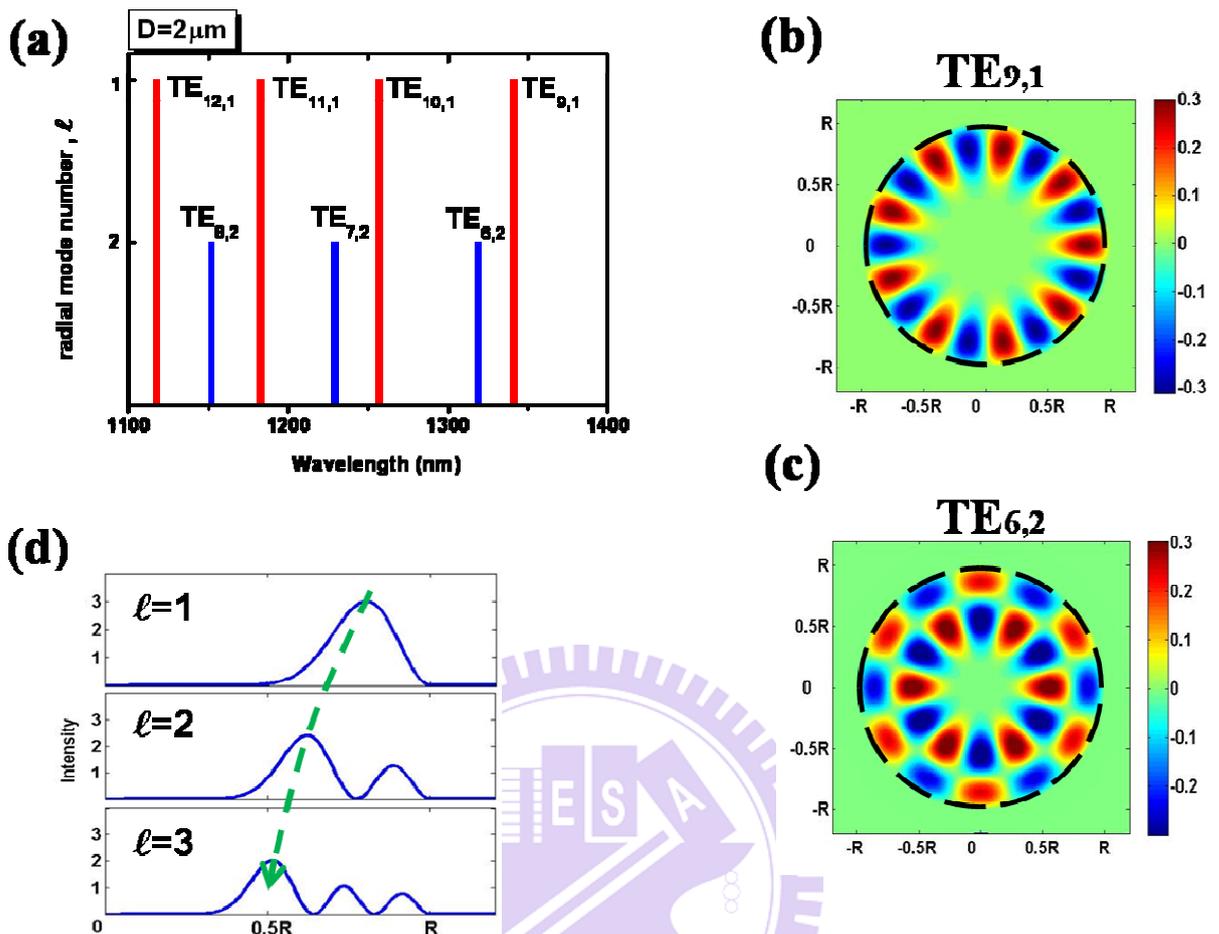
的徑向模態數  $l$ ，第一個零點對應到的徑向階數是  $l=1$ ，此時模態擁有最大的

有效半徑 (effective radius,  $R_{eff}$ )。  $R_{eff}$  定義為沿著半徑方向，WGMs 強度

極大值至微碟中心的距離。

這裡假設微碟半徑  $R$  為  $1\ \mu\text{m}$ 、厚度  $d=220\ \text{nm}$ 、砷化鎵折射率 3.4，以及空氣折射率 1。結果如圖 2-4(a) 所示，共振模態在波長範圍介於 1100 至 1400 nm 之間(即量子點發光範圍)，可觀察到徑向模態數為 1 的 WGMs 有 4 個，位於 1116、1181、1255 和 1339 nm，其所對應的方位角模態數  $m$  分別為 12、11、10 和 9；而徑向模態數為 2 的 WGMs 有 3 個， $m$  值則為 6 到 8。圖 2-4(b)(c) 分別表示  $\text{TE}_{9,1}$  和  $\text{TE}_{6,2}$  的 WGMs 在微碟共振腔內的平面電場分佈，虛線表示微碟共振腔邊界。圖 2-4(d) 是 WGMs 模態數  $m$  為 9 時，分別對  $l$  值為 1、2 和 3 時所做的電場強度對微碟半徑的分佈關係。可看出隨著  $l$  值越大，WGMs 場形分佈的有效半徑越小， $l$  為 1、2 和 3 所對應之  $R_{\text{eff}}$  分別約為 0.8、0.6 和 0.5R。





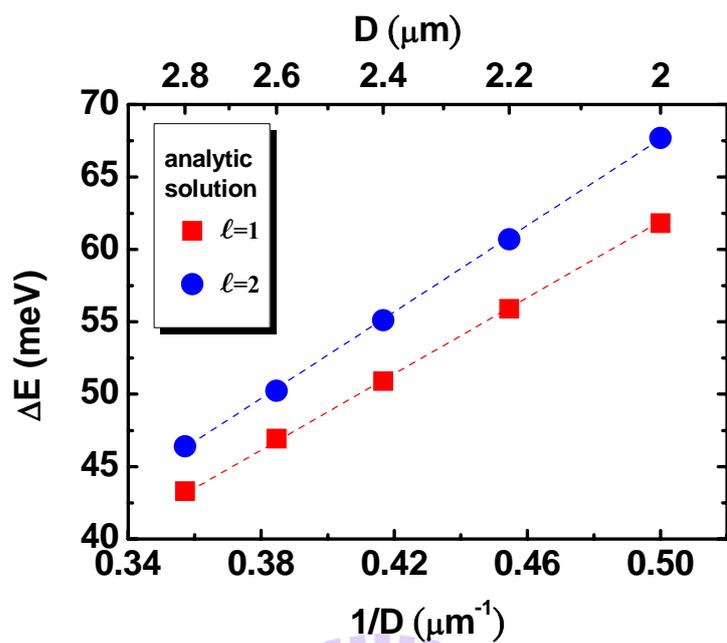
【圖 2-4】直徑 2  $\mu\text{m}$  的微碟共振腔 (a)WGMs 波長與其對應的模態數關係 (b)(c)  $\text{TE}_{9,1}$  和  $\text{TE}_{6,2}$  模態的平面電場分佈 (d)模態的有效半徑與徑向模態數的關係

對於WGMs，當微碟共振腔的直徑越大，表示光沿著微碟共振腔邊緣環繞的路徑越長。藉由駐波關係式  $\pi D = m \left( \frac{\lambda}{n} \right)$ ，其中  $D$  是直徑， $\frac{\lambda}{n}$  是光在介質中波長，整理後得到相鄰WGMs的模態能量間距寫成  $\Delta E = \left( \frac{1240}{\pi n} \right) \frac{1}{D}$ 。因此模態能量間距與直徑倒數呈線性關係，此關係可作為判斷微碟共振腔內的模態是否為WGMs的依據。圖2-5為解析近似法計算得到WGMs的能量

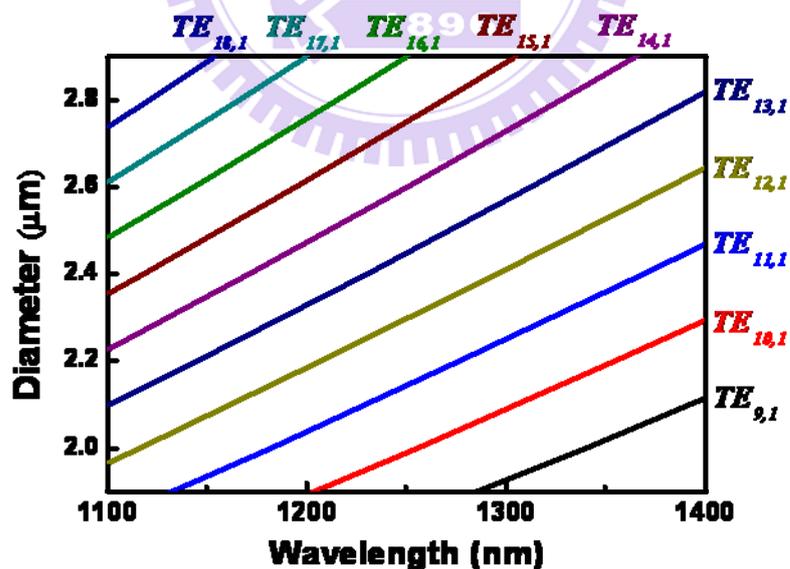
間距對直徑倒數的關係圖。圖中微碟共振腔的直徑由2.0到2.8  $\mu\text{m}$ 分佈，且有兩種族群的模態能量間距存在，分別為 $\ell=1$ 和 $\ell=2$ 的WGMs，其斜率分別為123和133。

由上頁所述的駐波關係式，對於同一  $m$  值的 WGMs，可知隨著微碟直徑越大，模態波長會有紅移的現象。圖 2-6 為直徑 2.0~2.8  $\mu\text{m}$  的微碟共振腔與其 WGMs 波長的關係。為避免圖過於複雜，圖中只標示了 $\ell=1$  的模態。對於  $D=2 \mu\text{m}$  的微碟， $\text{TE}_{10,1}$  的波長位於 1255nm；而  $D=2.2 \mu\text{m}$  的微碟， $\text{TE}_{10,1}$  的波長位於 1356nm，故微碟直徑每增加 100nm，WGMs 的波長紅移約為 50 nm。可見微碟共振腔的直徑大小對 WGMs 的波長是相當敏感的。





【圖 2-5】由解析近似法得到 WGMs 能量間距與直徑倒數的關係圖



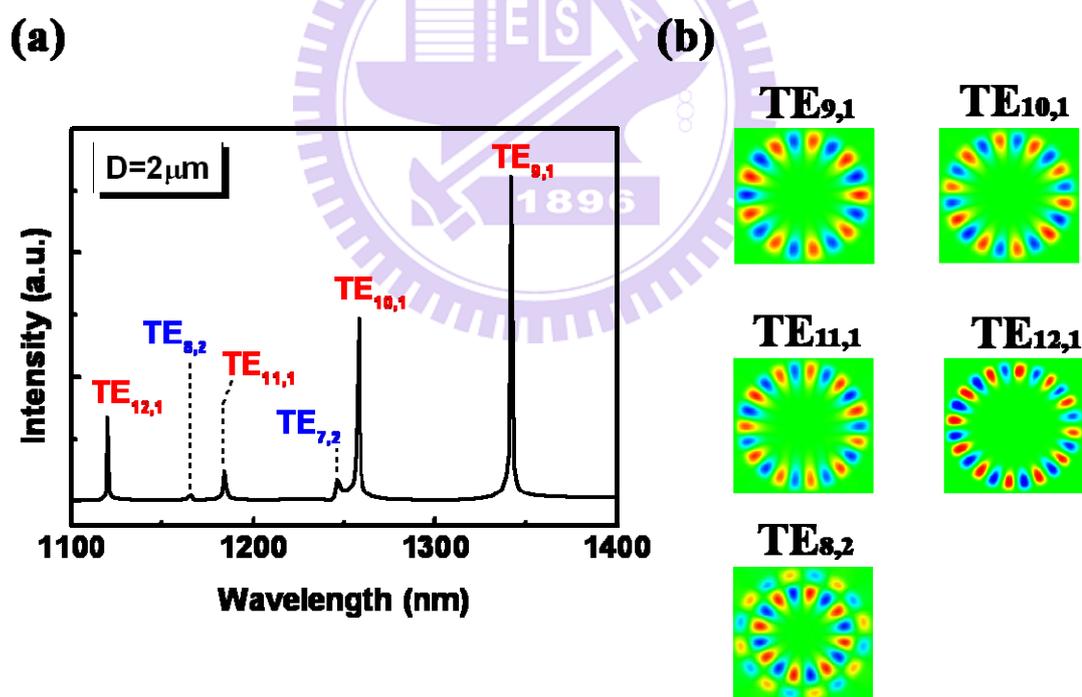
【圖 2-6】由解析近似法計算不同直徑的微碟共振腔與其 WGMs 波長關係圖

### 2-3 三維有限時域差分法 (3D-FDTD)

前面章節提到，解析解近似法是將三維空間轉換到二維平面來計算；然而 3D-FDTD 是將實際的三維空間切割成不連續的空間與時間來交錯計算，故 3D-FDTD 提供了另一種模擬方法讓我們可以和解析解近似法交叉比對獲得共振模式的預測。

圖 2-7 為 3D-FDTD 模擬直徑為  $2\ \mu\text{m}$ 、厚度  $220\ \text{nm}$  微碟共振腔的結果。

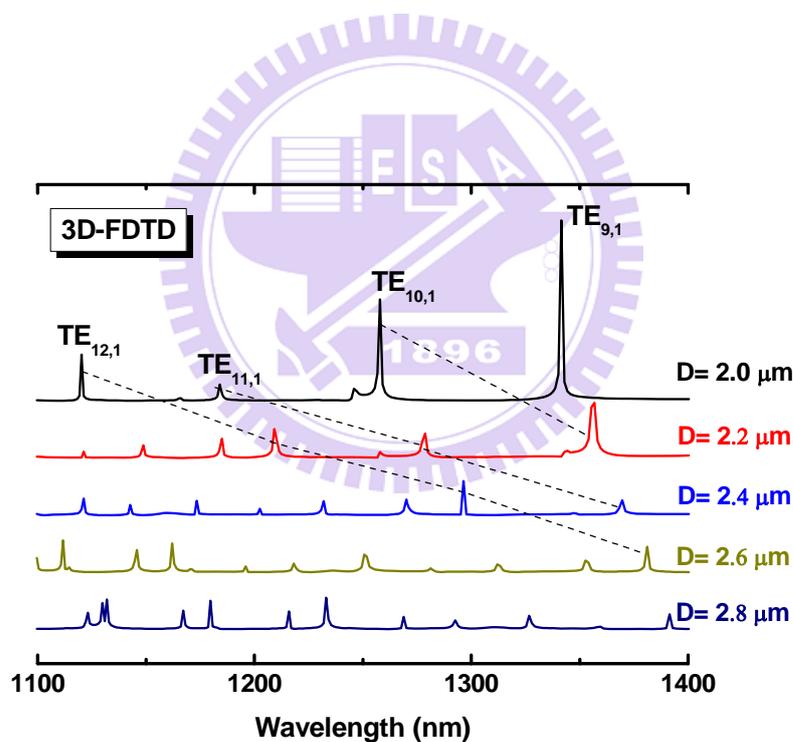
圖 2-7(a) 為模擬的譜圖。針對譜圖中每個 WGMs 的共振波長去做激發可得到各模式的場型分佈圖，如圖 2-7(b) 所示。



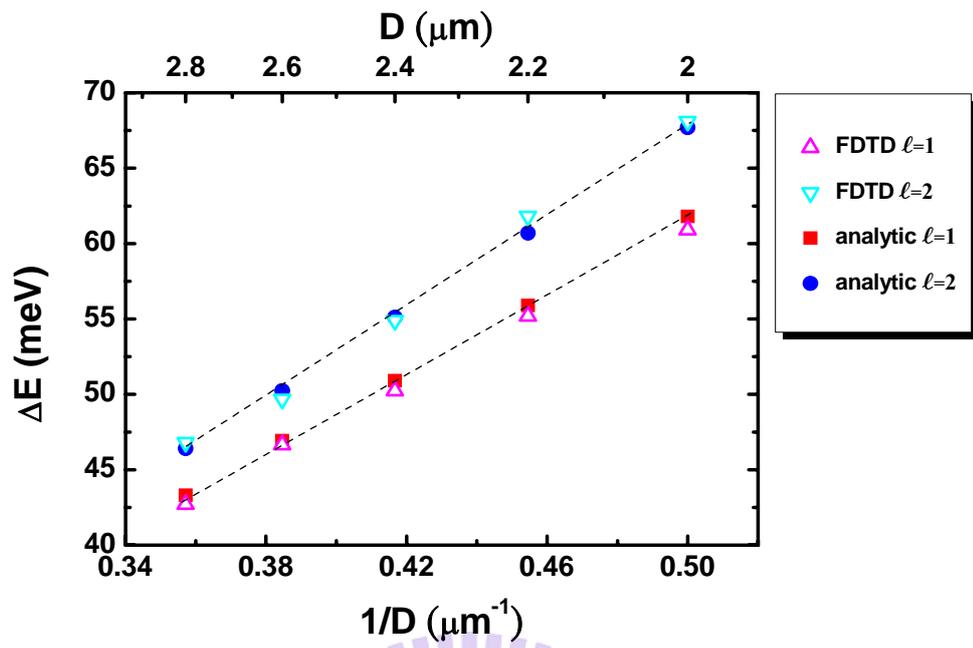
【圖 2-7】3D-FDTD 模擬直徑  $2\ \mu\text{m}$  微碟共振腔的結果

圖 2-8 為直徑 2.0~2.8  $\mu\text{m}$  微碟共振腔的模擬譜圖，虛線表示同樣模態數的 WGMs 隨微碟直徑變大而有波長紅移的趨勢。微碟直徑每增加 100 nm，波長紅移量約 50 nm，與解析解的計算結果近似。

圖 2-9 是 3D-FDTD 模擬 WGMs 模態能量間距與微碟直徑倒數的關係圖。這裡我們將解析近似法的結果一併放入，圖中空心符號為 3D-FDTD 的模擬結果，而實心符號則是解析近似法的結果。由圖可觀察到兩種理論方法的計算結果相當一致。



【圖 2-8】3D-FDTD 模擬直徑 2 到 2.8  $\mu\text{m}$  微碟共振腔的譜圖



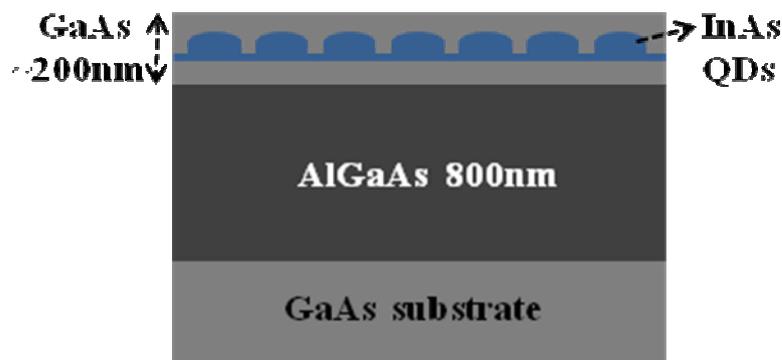
【圖 2-9】使用 3D-FDTD 與解析解近似法，計算模態能量間距與微碟直徑倒數的比較圖



# 第三章 微碟共振腔製備與量測實驗架構

## 3-1 量子點主動層結構

本研究所用來製作微碟共振腔的量子點主動層(active region)樣品是由國立中央大學電機工程學系蔡振瀛教授實驗室所成長，其結構如圖 3-1 所示。此量子點試片是利用分子束磊晶法(molecule beam epitaxy, MBE)成長，並以 S.K. 模式(Stranski-Kranstanov mode)形成量子點。首先，在砷化鎵基板(GaAs substrate)上先成長一層 800 nm 厚的砷化鋁鎵( $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ )當作犧牲層(sacrifice layer)，接著再成長厚度 100 nm 的砷化鎵緩衝層(buffer layer)，並於其上成長砷化銦(InAs)量子點。由於砷化銦晶格常數與底部砷化鎵晶格不匹配(lattice mismatch)，因而隆起形成砷化銦量子點，其密度約為  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 。最後樣品披覆一層 100 nm 厚的砷化鎵覆蓋層(capping layer)。



【圖 3-1】砷化銦量子點結構示意圖

## 3-2 微碟共振腔製作流程

我們使用兩階段的濕式蝕刻(wet etching)製程來製作微碟共振腔，各階段步驟敘述如下，而圖 3-2 則為各階段製程示意圖。

### A. 曝光 (Exposure)

首先使用負光阻當作往下蝕刻的遮罩(mask)。為了增加光阻與樣品表面的附著力，樣品表面必須是乾燥且潔淨無雜質的。因此上光阻前，我們先使用 HMDS (hexamethyl disilazane) 蒸鍍樣品表面。接著再以光阻塗佈機將光阻均勻塗佈在樣品表面上，其厚度約 300 nm。最後利用電子束微影術 (E-beam lithography) 定義直徑介於 2~4  $\mu\text{m}$  的微碟大小與位置。光阻經過曝光與顯影後便可進行濕式蝕刻，將微碟光阻遮罩轉移至下層。

### B. 濕蝕刻 (GaAs / AlGaAs etching)

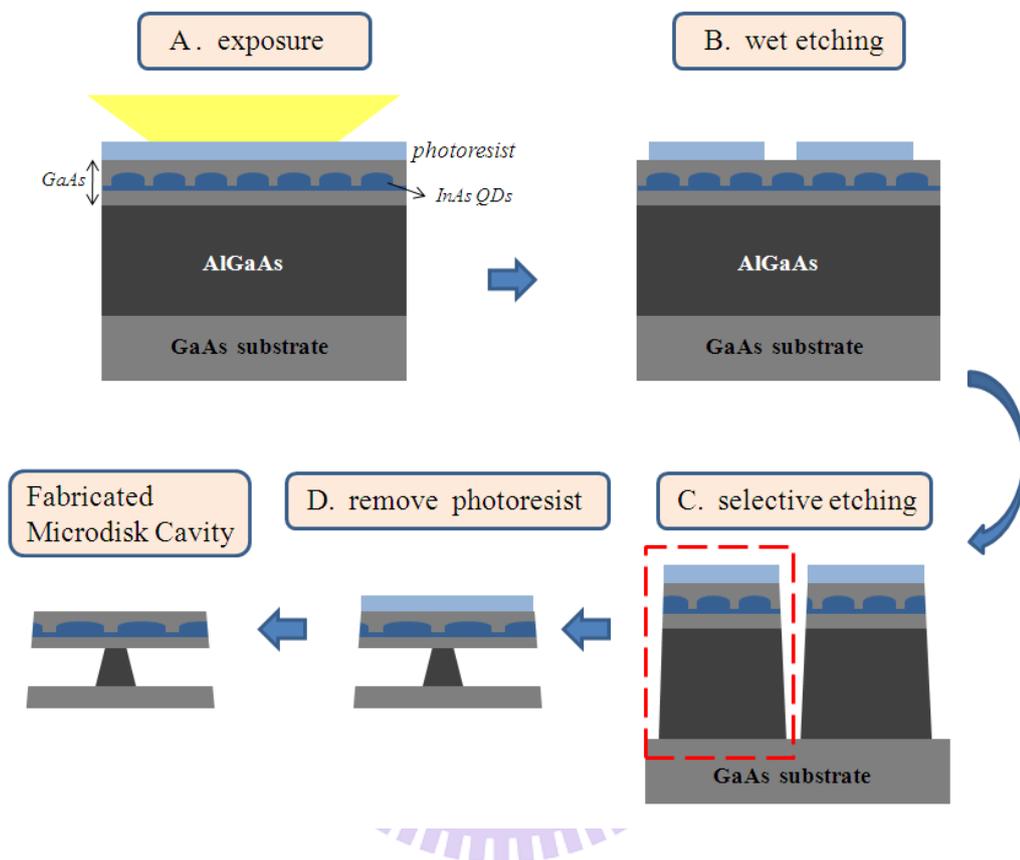
為了將微碟光阻遮罩轉移至下層的砷化(鋁)鎵層，我們使用氫氯酸 (HCl) 當作主要的蝕刻液。溶液依 HCl、 $\text{H}_2\text{O}_2$  和  $\text{H}_2\text{O}$  不同比例調配，可找出最適合的蝕刻速率為 10~40 nm/s。樣品經過蝕刻液浸泡 25~35 s 之後，以去離子(de-ion, DI)水潔淨。

### C. 選擇性蝕刻 (Selective etching)

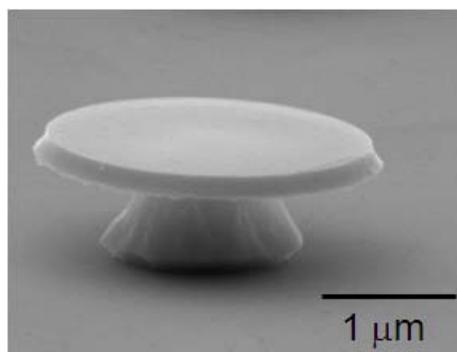
為了將砷化鎵共振腔本體懸立在空氣中，我們以下層的砷化鋁鎵當作微碟的支撐柱，並使用氫氟酸(HF)當作蝕刻液。溶液依 HF 和  $\text{H}_2\text{O}$  不同比例調配，蝕刻速率為 10~30 nm/s，最後同樣以去離子水潔淨。

#### D. 去光阻 (Remove photoresist)

將樣品浸泡在丙酮(acetone)內約 2 小時，即可去除表面殘留的光阻。製成後的微碟共振腔 SEM 影像如圖 3-3 所示。



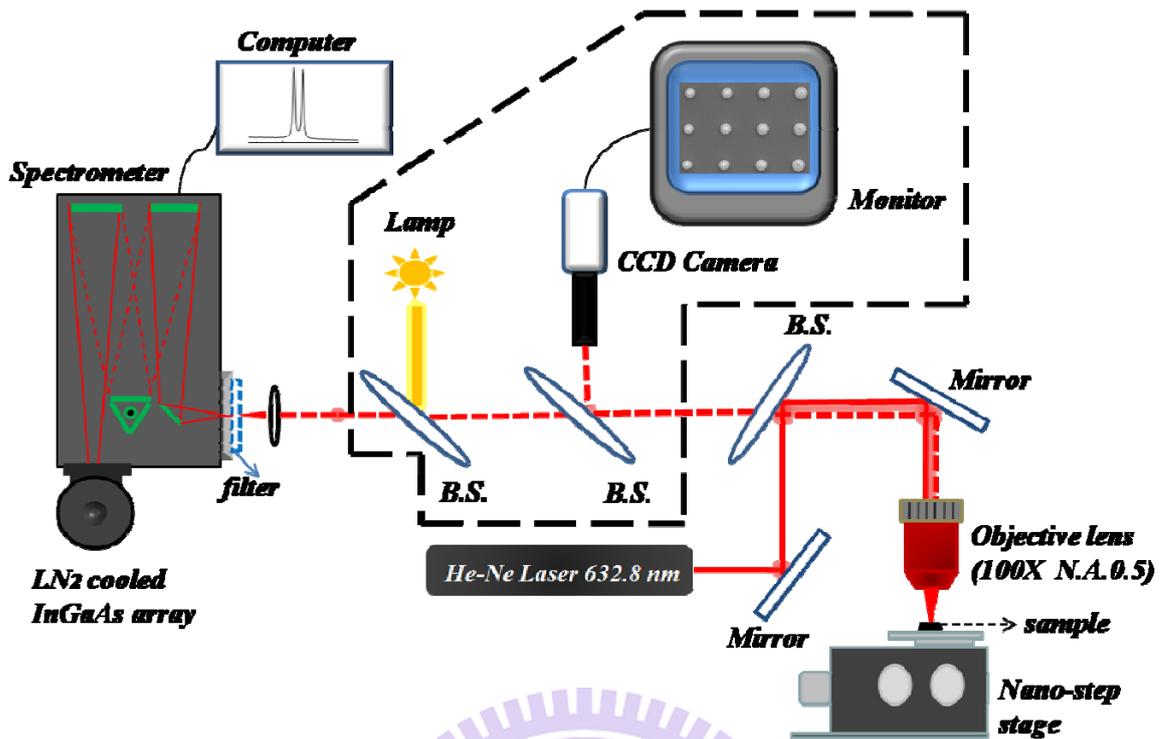
【圖 3-2】微碟共振腔各階段製作流程示意圖



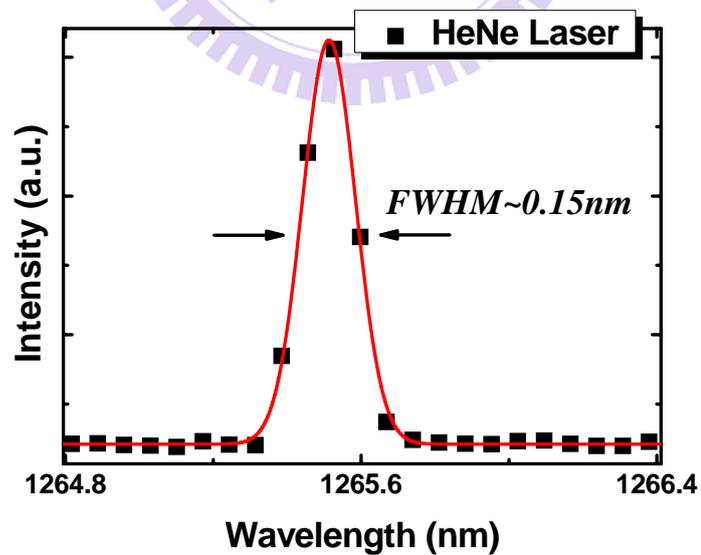
【圖 3-3】微碟共振腔的 SEM 影像

### 3-3 顯微光激螢光光譜實驗架構

為了針對單一微碟共振腔進行光學特性量測，我們使用顯微光激螢光 (micro-photoluminescence,  $\mu$ PL) 光譜技術來精準定位並激發及偵測單一微碟共振腔，其實驗架構如圖 3-4 所示。激發光源是氦氖雷射，波長為 632.8 nm。雷射光經過 100 倍物鏡聚焦至單一微碟共振腔，其光點直徑大小約為  $2\mu\text{m}$ 。圖中虛線部分為成像系統，利用分光鏡 (beam splitter, B.S.) 將雷射和白光燈源聚至樣品表面並反射到 CCD Camera，透過監視器可清楚的看到樣品表面和雷射聚焦。樣品發出的螢光經由上述同一顯微物鏡收集後聚焦至光譜儀狹縫形成共軛焦 (confocal)，經由光譜儀光柵分光後由砷化銦鎵二極體陣列 (InGaAs-diode array) 偵測，經電腦處理後即得到螢光譜圖。本裝置的光譜解析度約為 0.15 nm，如圖 3-5 所示，藉由量測雷射二階訊號以獲得光譜解析極限。



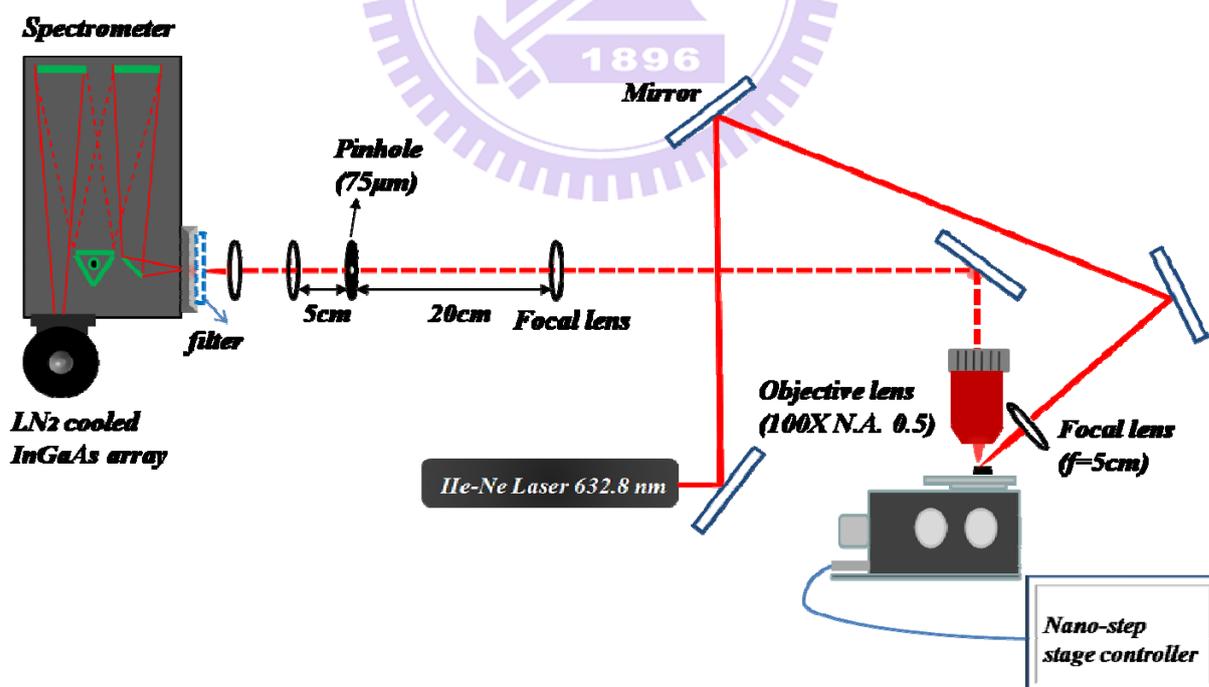
【圖 3-4】顯微光激螢光(μPL)系統的架構圖



【圖 3-5】μPL 系統的光譜解析

### 3-4 顯微光激螢光光譜空間解析實驗架構 (Mapping)

為了瞭解由微碟共振腔所發出的各WGMs螢光強度的空間分佈，我們使用 $\mu$ PL進行空間上的解析量測，也就是映製(mapping)出微碟共振腔的WGMs螢光強度隨空間位置的關係圖，其實驗架構如圖3-6所示。實驗上，我們對整個微碟共振腔均勻激發，以屏除激發光源隨空間位置改變的因素。我們使用焦距50 mm的透鏡達到對樣品均勻激發的效果，而樣品發出的螢光訊號經100X物鏡(焦距2 mm)收集後由焦距為200mm的透鏡聚焦至75 $\mu$ m的孔徑(pinhole)形成共軛焦。最後再經由電控樣品的移動平台達到映製的目的，其空間平面解析度為0.75  $\mu$ m。



【圖 3-6】 $\mu$ PL 空間解析的量測架構圖

## 第四章 實驗結果與討論

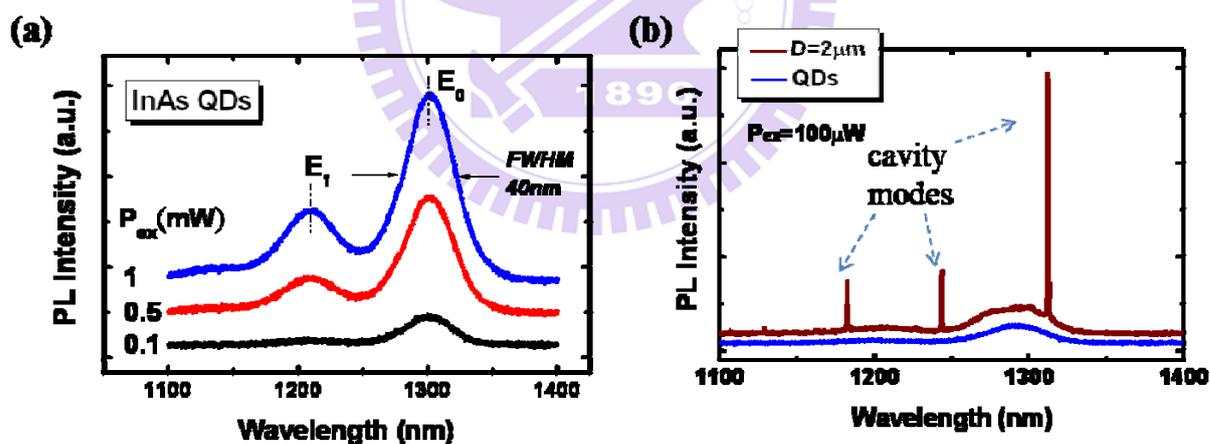
本章節架構大致分為兩部分討論，首先對微碟共振腔的光譜特徵進行分析，實驗上是使用顯微光激螢光光譜( $\mu$ PL)技術進行量測，並配合掃描式電子顯微鏡進行形貌上的分析。藉由觀察不同直徑的微碟共振腔的模態變化，可證實觀察到的共振模態為環繞著微碟周圍而形成的耳語廊模態(WGMs)。接著會將理論計算與實驗結果比較以預測 WGMs 的模態數，理論方法包含解析近似法與三維有限時域差分法。此外，本研究也會對微碟共振腔進行改變激發光源強度與時間解析光譜的實驗量測。第二部分將分別說明利用  $\mu$ PL 與近場光學對微碟共振腔進行空間解析的量測結果。

### 4-1 微碟共振腔之譜線特徵

#### 4-1-1 不同直徑微碟共振腔之模態

本實驗所量測的微碟共振腔樣品，其直徑分布範圍約介於  $1.8\ \mu\text{m}$  至  $3.5\ \mu\text{m}$  之間。圖 4-1(a)為室溫下量測砷化銦量子點(InAs QDs)的螢光光譜。量子點基態( $E_0$ )發光波長位於  $1300\ \text{nm}$  附近，剛好為光纖通訊所需的  $1.3\ \mu\text{m}$ 。隨著雷射激發功率的增加，由於量子點基態能態填充效應，可明顯看出在  $1210\ \text{nm}$  處出現了量子點第一激發態( $E_1$ )的螢光訊號。基態的半高寬(full width at half maximum, FWHM)約為  $40\ \text{nm}$ ，是由自組成量子點大小分佈的

不均勻性所造成對光譜能量的非均勻性寬化(inhomogeneous broadening)。此寬化效應也使量子點提供了微碟共振腔一個寬頻的光源，使得我們可以在量子點的發光範圍內同時觀察到許多的共振模態。圖 4-1(b)為激發功率 100  $\mu\text{W}$  (功率密度約  $3 \text{ kW/cm}^2$ ) 時，對直徑(D)  $2 \mu\text{m}$  的微碟共振腔所量測之螢光光譜。由譜圖中可觀察到一些很細的譜線，即為共振模態；後面會說明這些細譜線即為 WGMs。使用勞倫茲曲線擬合(Lorentzian fitting)分析 WGMs 半高寬，其範圍分布介於  $0.2 \text{ nm}$  至  $0.6 \text{ nm}$  之間。與 WGMs 重疊的寬頻螢光訊號為量子點螢光，而這些觀察到的 WGMs 則是由量子點螢光耦合至微碟共振腔而產生。

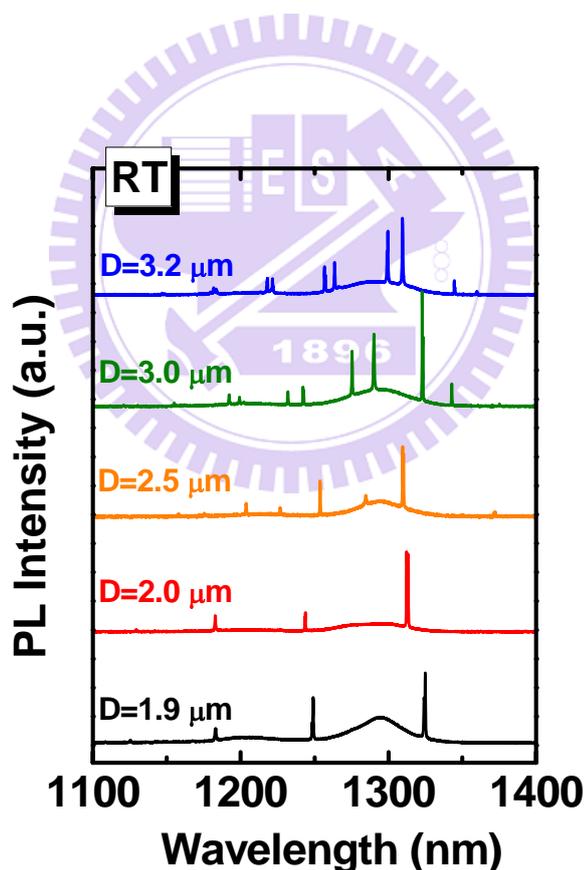


【圖 4-1】室溫下，(a)砷化銦量子點以及 (b)直徑  $2 \mu\text{m}$  的微碟共振腔所量測之顯微光激螢光光譜

圖 4-2 同為激發功率  $100 \mu\text{W}$ ，針對不同直徑大小之微碟共振腔所量測之顯微光激螢光光譜。當微碟共振腔的直徑由  $1.9 \mu\text{m}$  逐漸往  $3.2 \mu\text{m}$  增大時，從譜線中可觀察到模態數目也隨之增加，同時模態間距(mode spacing)也隨著直徑變大而減少<sup>14</sup>。

針對上述實驗觀察到的現象可由簡單數學式描述。當微碟共振腔的直徑越大，表示光沿著微碟共振腔邊緣環繞的路徑越長；藉由駐波關係式

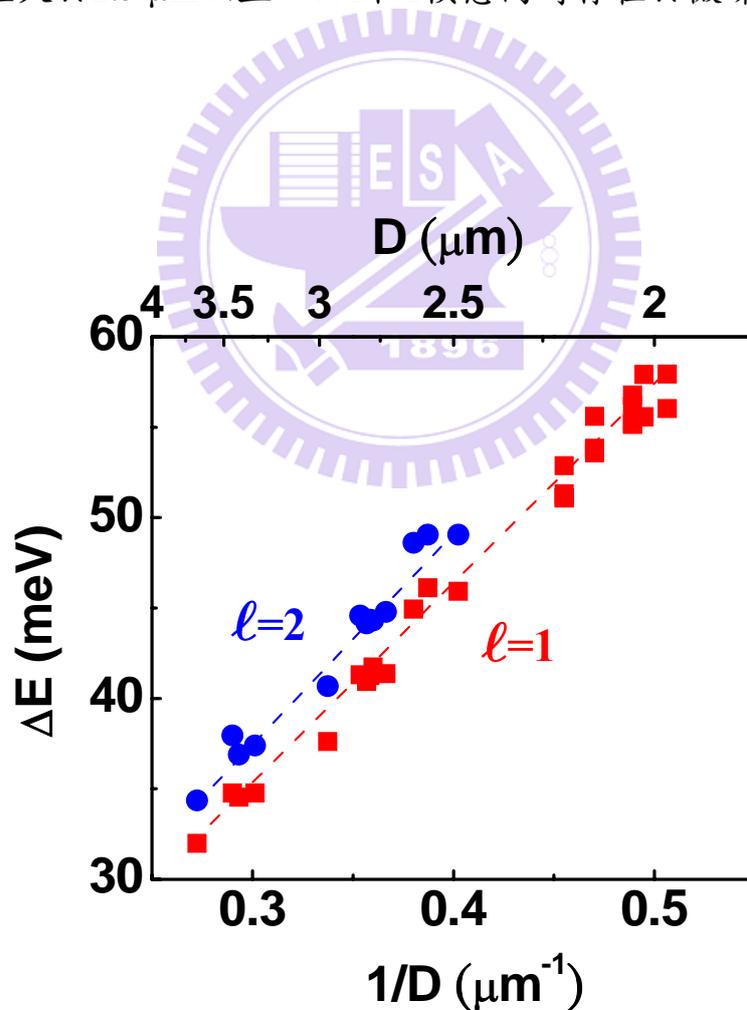
$\pi D = m \left( \frac{\lambda}{n} \right)$ ，其中  $D$  是微碟共振腔直徑， $\frac{\lambda}{n}$  是光在介質中波長， $m$  為方位



【圖 4-2】針對不同直徑大小的微碟共振腔所量測之顯微光激螢光光譜

角模態數。整理後得到相鄰WGMs的模態能量間距可寫成  $\Delta E = \left(\frac{1240}{\pi n}\right) \frac{1}{D}$ ，

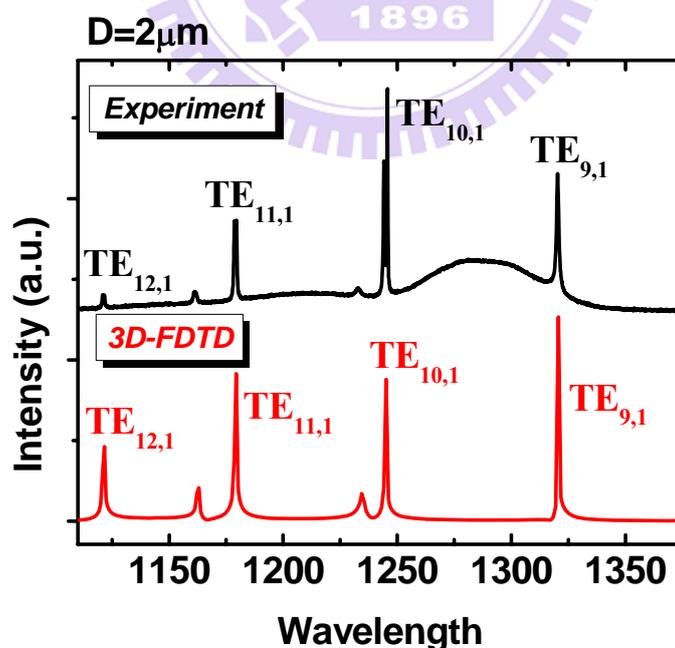
因此模態能量間距與直徑倒數呈線性關係。圖4-3為WGMs的能量間距對直徑倒數的關係圖。圖中分析了數十個直徑大小不同之微碟共振腔，其直徑介於1.8至3.2  $\mu\text{m}$ 之間。由圖可觀察 $\Delta E$ 與 $1/D$ 呈線性關係分佈，且有兩種族群的模態能量間距存在。由第二章分析可知，分別對應至徑向模態數 $l=1$ 和 $l=2$ 的WGMs，其斜率為105。當直徑小於2.5  $\mu\text{m}$ 時，主要觀察到的是 $l=1$ 的模態；而直徑大於2.5  $\mu\text{m}$ 以上， $l=1$ 和2模態同時存在於微碟共振腔內。



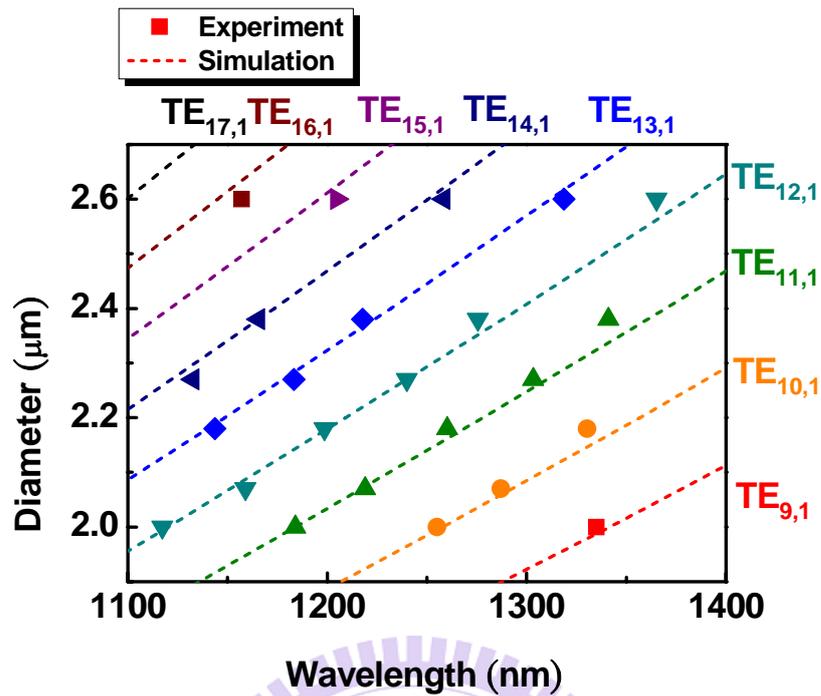
【圖 4-3】WGMs 能量間距( $\Delta E$ )對直徑倒數( $1/D$ )的關係圖

經由第二章的理論背景，我們已經對微碟共振腔的WGMs基本特性有所了解，包含直徑與模態間距的關係，模態場型分佈等。接著我們將模擬與實驗量測的 $\mu$ PL光譜比較，並對WGMs的模態數進行判別。圖4-4同為直徑 $2\ \mu\text{m}$ 的微碟共振腔實驗與3D-FDTD模擬的譜圖，模擬的詳細參數可參考第二章。實驗結果與理論計算非常接近，故我們可指出WGMs的模態數。

圖 4-5 顯示了一系列不同直徑大小微碟共振腔的實驗與模擬的比較圖。實心符號與虛線分別表示實驗與模擬的結果，可觀察到實驗與模擬有很好的對應關係。對於已知直徑大小的微碟，我們將其實驗量測波長放入圖 4-5 中，即可標示出各 WGMs 的模態數。



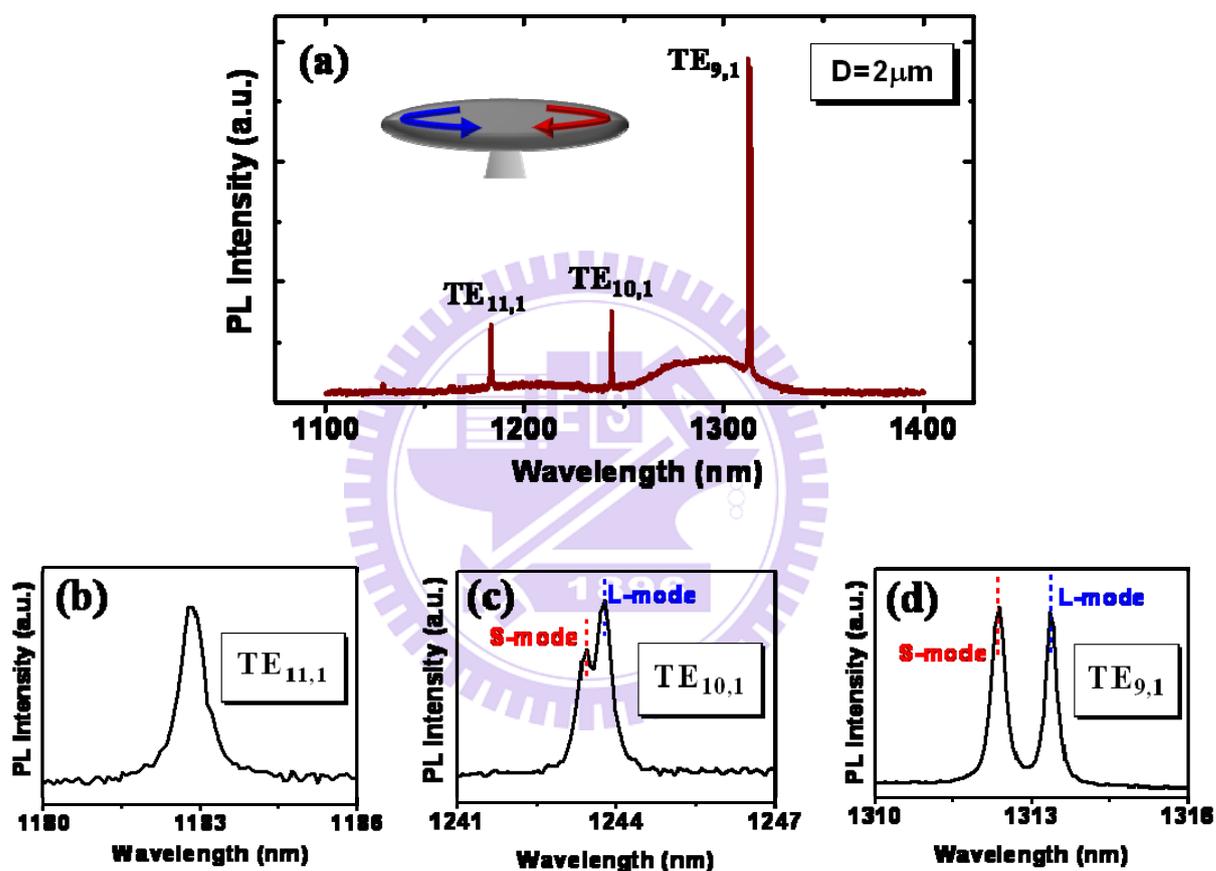
【圖 4-4】直徑  $2\ \mu\text{m}$  的微碟共振腔，實驗與 3D-FDTD 的模擬譜圖



【圖 4-5】實驗與模擬，針對不同直徑的微碟共振腔與其共振波長的比較圖

在分析譜線時，我們發現WGMs會有分裂的現象，如圖4-6(a)所示。圖中是直徑2  $\mu\text{m}$ 微碟共振腔的 $\mu\text{PL}$ 譜圖。由理論計算得知在1313、1244和1183 nm附近所對應的WGMs模態數分別為 $\text{TE}_{9,1}$ 、 $\text{TE}_{10,1}$ 和 $\text{TE}_{11,1}$ ，圖4-6(b) (c) (d) 為各模態放大圖，可觀察到WGMs會分裂成兩峰值，我們以S和L-mode分別表示較短波長和較長波長的模態。譜線分裂以 $\text{TE}_{9,1}$ 和 $\text{TE}_{10,1}$ 較為顯著，而 $\text{TE}_{11,1}$ 因分裂量低於譜線解析寬度(0.15 nm)而不明顯。文獻指出<sup>15</sup>，對於理想的微碟共振腔，WGMs在共振腔內部周圍傳播時會沿著順時針和逆時針方向環繞，如圖4-6(a)的插圖所示。故每一個WGMs皆存在雙重簡併(doublet degeneracy)模態。然而，在製程過程中可能會造成的微碟共振腔側邊的不平

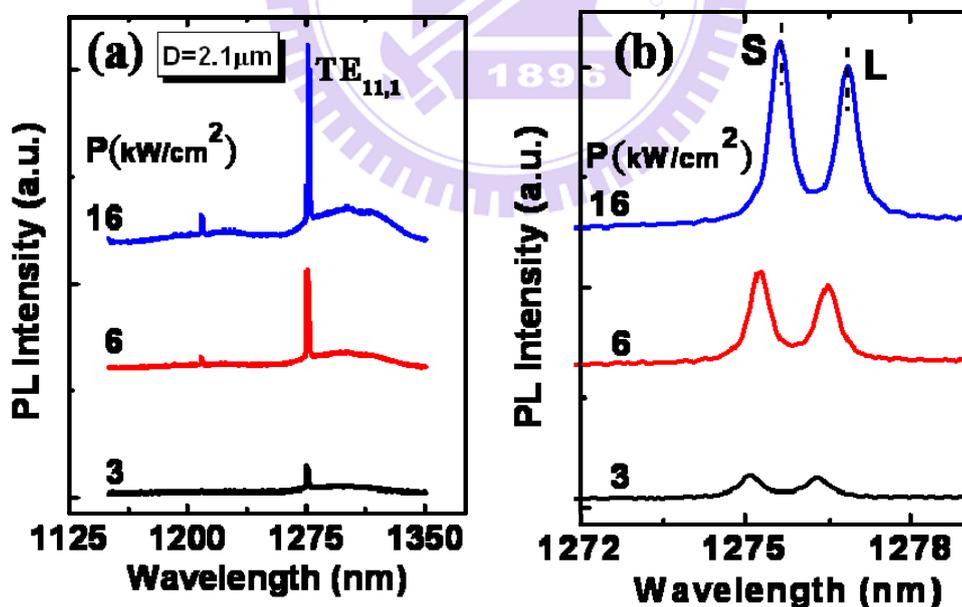
整(sidewall roughness)，導致沿著順時針和逆時針方向環繞的WGMs的光程路徑會有些微差異，因而破壞了其簡併性，使得我們可經由光譜觀察到此現象。



【圖 4-6】(a)直徑為  $2\ \mu\text{m}$  微碟共振腔之顯微光激螢光光譜，(b) (c) (d)分別為方位角模態數  $m=11$ 、 $10$  和  $9$  的 WGMs 放大圖，S 和 L-mode 表示較短波長和較長波長的模態

#### 4-1-2 改變激發光源強度量測

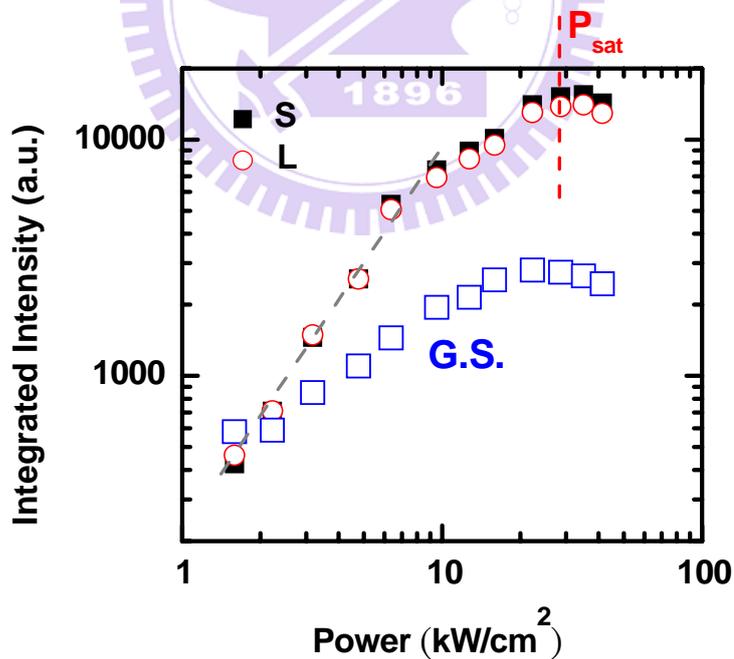
由上節，我們藉由 $\mu$ PL量測，已經對微碟共振腔之基本光譜特性有所了解。在本節，我們對微碟共振腔進行改變激發光源強度的量測，藉以了解WGMs在不同激發功率下的譜線特徵。圖4-7(a)為在室溫以氬氬雷射激發所量測直徑 $2.1\mu\text{m}$ 的微碟共振腔在不同激發功率下之顯微光激螢光光譜。隨著激發功率增加，可觀察到WGMs螢光強度隨著激發功率的增加而增加。將 $\text{TE}_{11,1}$ 的模態放大來看，可看到WGMs的共振波長隨著激發功率增加而有明顯紅移的現象，如圖4-7(b)所示，其中S和L分別表示所分裂出短波長和長波長的模態。



【圖 4-7】直徑為  $2.1\mu\text{m}$  的微碟共振腔，隨著激發功率改變，螢光譜線的變化情形 (a) 隨著激發功率增加，WGMs 的螢光強度增加 (b)將 $\text{TE}_{11,1}$ 的 WGMs 放大來看，可發現模態有明顯紅移的現象

首先我們分析  $TE_{11,1}$  的模態螢光強度隨著激發功率改變的關係圖，如圖4-8所示。圖中顯示WGMs之螢光強度在低激發功率時隨著功率增大呈現線性的增加，且在功率達到 $30 \text{ kW/cm}^2$ 後強度會有飽和(saturation)的現象。圖中也顯示了量子點基態螢光強度與激發功率的關係。由圖可觀察到其與WGMs均有飽和的傾向，推測WGMs的強度飽和應來自於量子點基態的填態飽和有關係。

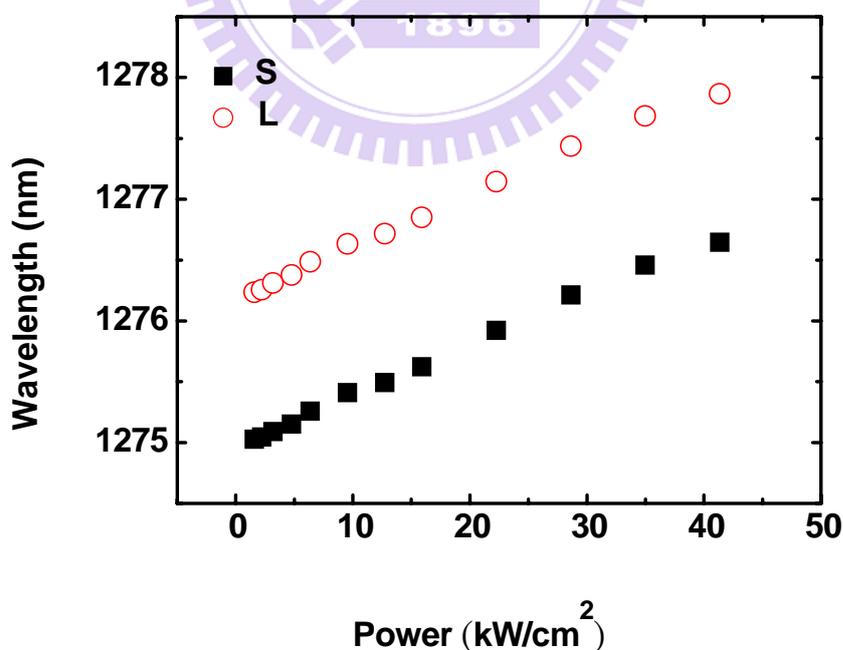
在我們的樣品中並沒有觀察到有雷射臨界的現象，可能原因是微碟共振腔的發光主動層為單層量子點，以致材料增益(material gain)不足以提供共振腔達到雷射臨界的需求。



【圖4-8】直徑 $2.1 \mu\text{m}$ 的微碟共振腔所量測的PL強度對激發功率關係圖

圖4-9是WGMs共振波長與雷射激發功率的關係圖。當激發功率增加時，由於雷射光對共振腔會有局部加熱效應，因此產生波長紅移現象。這表示砷化鋁鎵的微碟支撐柱無法有效的將多餘的熱量散逸，導致微碟共振腔的溫度上升。此波長紅移量為 $\Delta\lambda=0.04$  (nm/kW)，而導致此紅移的熱效應有兩種，分別是熱膨脹和折射率隨溫度變化<sup>16</sup>的效應。

首先我們先討論熱膨脹效應對WGMs發光波長的影響。因微碟共振腔是由砷化鎵構成，其熱膨脹係數為 $\gamma=5.8\times 10^{-6} K^{-1}$ 。利用微碟共振腔的圓周長等於共振波長的整數倍 $2\pi R=m(\frac{\lambda}{n})$ 來估算，其中 $R$ 是半徑、 $m$ 是方位角模態數、 $\frac{\lambda}{n}$ 是共振波長而 $n$ 是則材料折射率(室溫下砷化鎵折射約為3.4)。假



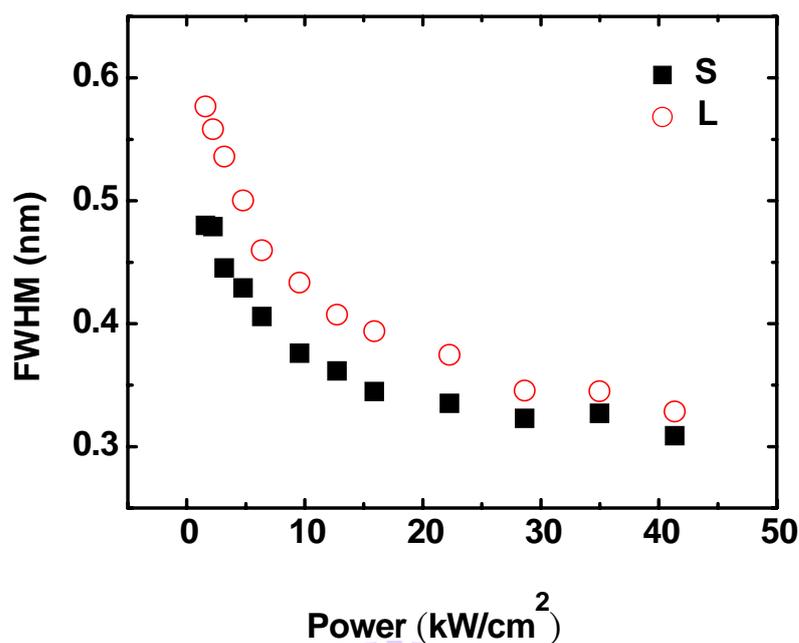
【圖 4-9】顯示了隨著雷射激發功率的增加，WGMs 會有紅移效應

設  $m$  和  $n$  是定值，也就是只考慮熱膨脹效應，經計算後得到共振波長紅移量隨溫度變化為  $\Delta\lambda \sim 0.008 \text{ (nm/K)}$ 。

我們知道砷化鎵折射率  $n$  也會隨著溫度上升而改變，而折射率的變化會導致共振波長的改變。經由文獻得知其關係為  $\frac{1}{n} \frac{\Delta n}{\Delta T} = 7.5 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ ；這裡忽略熱膨脹效應故可假設  $\lambda/n$  為定值，亦即在介質中的波長不改變。經計算後得到因折射率變化而導致波長紅移隨溫度變化量為  $\Delta\lambda \sim 0.1 \text{ (nm/K)}$ 。

由上面估計我們可推知WGMs波長紅移的主要因素為折射率隨溫度變化的效應，而熱膨脹效應的影響則小了大約一個數量級左右。觀察圖4-9中的WGMs波長的紅移量約為1.6 nm，因此我們可大致估計由於雷射功率增加導致微碟共振腔溫度的上升約為16 K。

隨著雷射激發功率的增加，WGMs的半高寬( $\Delta\lambda$ )會有變窄的趨勢<sup>17, 18</sup>，如圖4-10所示。以S模態而言，當激發功率在1.6 kW/cm<sup>2</sup>時半高寬為0.48 nm。隨著激發功率增加，半高寬會逐漸變窄，大約到30 kW/cm<sup>2</sup>附近時會趨近定值0.31 nm。



【圖 4-10】 WGMs 半高寬會隨著雷射激發功率的增加而減少

由實驗上所量測到的模態半高寬可得知微碟共振腔的品質因子(quality factor)，即  $Q$  值(見4-1-3節)，且  $Q = \lambda / \Delta\lambda$ ，其中  $\lambda$  為共振波長；微碟共振腔的  $Q$  值主要有三項因素所主導<sup>11, 14, 19</sup>：

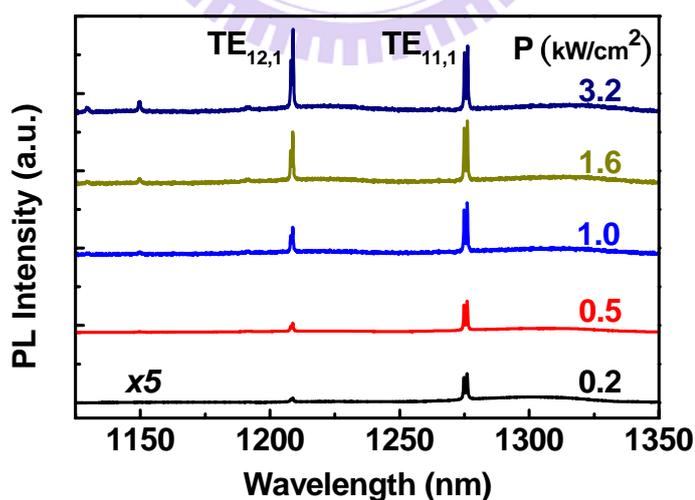
$$Q^{-1} = Q_i^{-1} + Q_\alpha^{-1} + Q_s^{-1} \quad (4.1)$$

，其中  $Q_i$  是指理想微碟共振腔的本徵(intrinsic)  $Q$  值，其值與方位角模態數  $m$  呈指數函數關係， $Q_i \sim e^{2mJ}$ ，而  $J = \tanh^{-1}(s) - s$  且  $s = \sqrt{1 - 1/n_{eff}^2}$ ； $Q_i^{-1}$  代表的是理想微碟共振腔本身的幅射損耗； $Q_\alpha^{-1}$  表示由於量子點的光學吸收(optical absorption)所導致的損耗項；而最後一項  $Q_s^{-1}$  則是由於微碟共振腔邊緣的表面平整度所造成光散射(scattering)的損耗項。由於  $Q_i^{-1}$  與  $Q_s^{-1}$  與激發光源的強度無關，而是取決於共振腔本身的品質特性。故當雷射激發功率改

變時，實驗量測到的 $Q$ 值會由 $Q_\alpha$ 所主導。

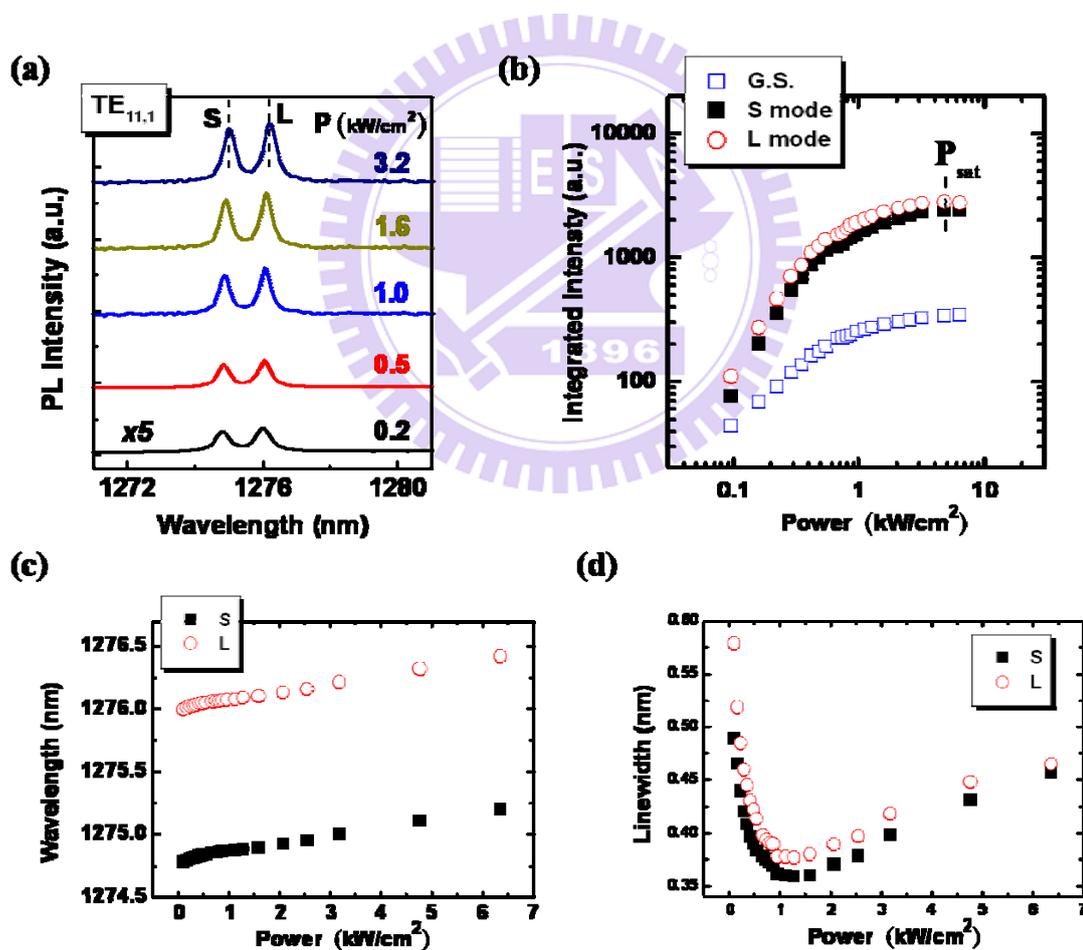
針對同一個微碟共振腔(直徑 $2.1\mu\text{m}$ )，我們也使用波長 $750\text{ nm}$ 的鈦-藍寶石(Ti-sapphire)脈衝雷射當激發光源，量測不同激發功率下微碟的譜線特徵。其顯微光激螢光光譜如圖4-11所示。在低激發功率時( $0.2\text{ kW/cm}^2$ )時，譜線主要是由位於量子點基態發光範圍內 $\text{TE}_{11,1}$ 的模態所主導。隨著激發功率增加，譜線由量子點激態發光範圍內 $\text{TE}_{12,1}$ 的模態所主導，其螢光強度會隨激發功率增加而急遽增加。

圖 4-12(a)顯示 $\text{TE}_{11,1}$ 的 WGMS 分裂為 S 和 L 模態。圖 4-12(b) 顯示 WGMS 之螢光強度在低激發功率時隨著功率增大而線性的增加，且在功率達到 $5\text{ kW/cm}^2$ 後強度會有飽和的現象。圖中也顯示了量子點基態螢光強度

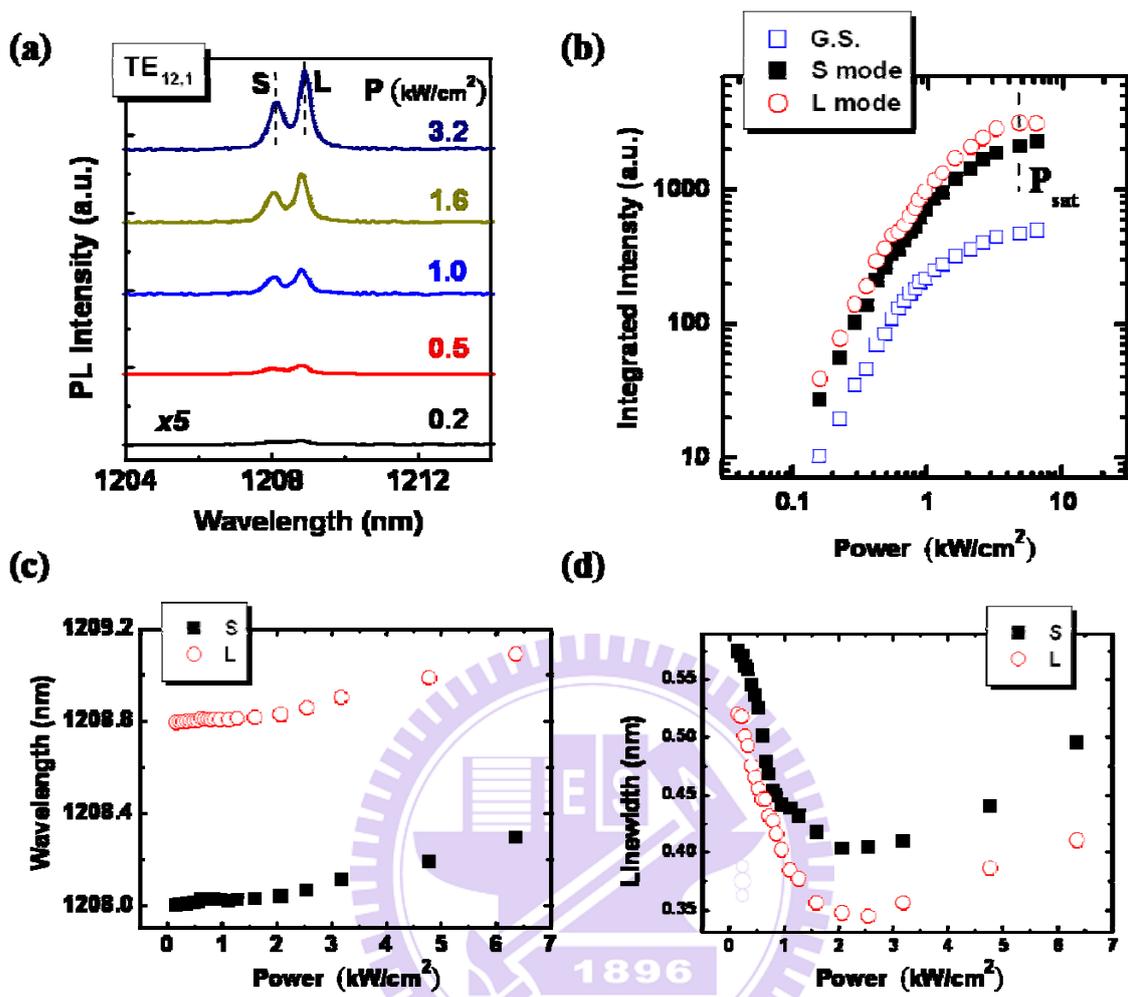


【圖 4-11】使用脈衝雷射當激發光源，量測不同激發功率下，直徑 $2.1\mu\text{m}$ 微碟的螢光譜線

與激發功率的關係。同前述，WGMs 的強度飽和應與量子點基態的填態飽和有關。圖 4-12(c)為 WGMs 波長與激發功率關係，可觀察出波長紅移現象，紅移量為 $\Delta\lambda=0.06$  (nm/kW)。圖 4-12(c)顯示在低激發功率(1.3 kW)時，隨著激發功率的增加，WGMs 的半高寬會有變窄的趨勢，此現象與量子點的光學吸收有關。在高激發功率時，WGMs 的半高寬逐漸變寬，Q 值降低，文獻指出此與自由載子的吸收<sup>14</sup>有關。圖 4-13 為 $TE_{12,1}$ 的 WGMs 的分析結果，皆有類似的趨勢。



【圖 4-12】使用脈衝雷射當激發光源，量測 $TE_{11,1}$ 的 WGMs 在不同激發功率下的實驗結果



【圖 4-13】使用脈衝雷射當激發光源，量測TE<sub>12,1</sub>的 WGMs 在不同激發功率下的實驗結果

### 4-1-3 Q 值分析

Q值對於任何共振腔是一項很重要的參數，它主要反映了光被侷限在微共振腔內的能力。對於理想的微共振腔，光會被永久地侷限在內部。然而在實際的微共振腔，光在內部多次反射或是腔體表面的不平整均會造成能量的損耗。在微共振腔內模態的Q值定義為：

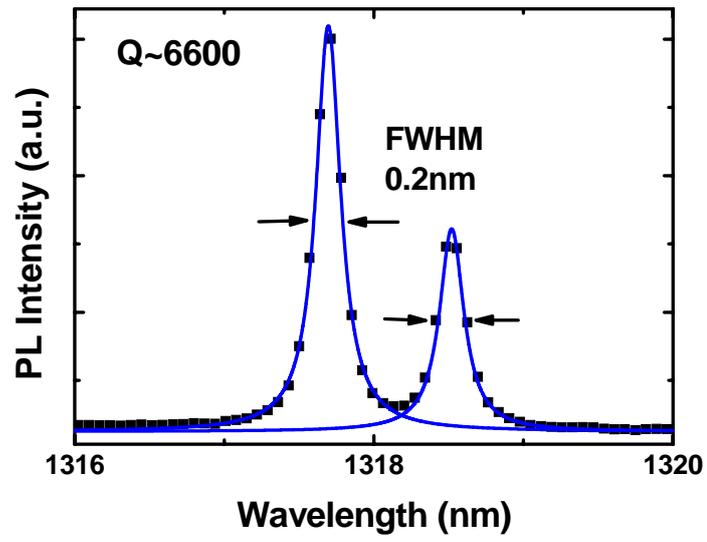
$$Q = 2\pi \frac{\text{energy store in cavity}}{\text{energy loss per cycle}} = \omega_0 \frac{U(t)}{-\left(\frac{dU(t)}{dt}\right)} \quad (4.2)$$

， $\omega_0$ 為共振頻率， $U(t)$ 表示儲存光子能量(store energy)， $-\left(\frac{dU(t)}{dt}\right)$ 項可視為能量損耗的速率。透過解式(4.2)微分方程得到 $U(t) = U(0)\exp(-\omega_0 t / Q)$ ，故Q值也說明了光子儲存在共振腔的生命期 $\tau_{cavity} = \frac{Q}{\omega_0}$ 。實驗上，Q值可透過光譜量測得到：

$$Q = \frac{\omega_0}{\Delta\omega} = \frac{\lambda_0}{\Delta\lambda} \quad (4.3)$$

，其中 $\Delta\lambda(\Delta\omega)$ 為頻譜半高寬。

我們量測系統可解析的最大Q值在中心波長1300 nm且光譜解析為0.15 nm下約為8600，圖4-14為實驗量測到最高Q值的WGMs，其半高寬為0.2 nm，計算後的Q值約為6600。而 $\tau_{cavity}$ 計算後約為4.7 ps，換算光在介質中(GaAs)走的距離約為415  $\mu\text{m}$ ，而此微碟直徑大小為2.3  $\mu\text{m}$ ，因此光子相當於在微碟圓周環繞57圈後才消散。



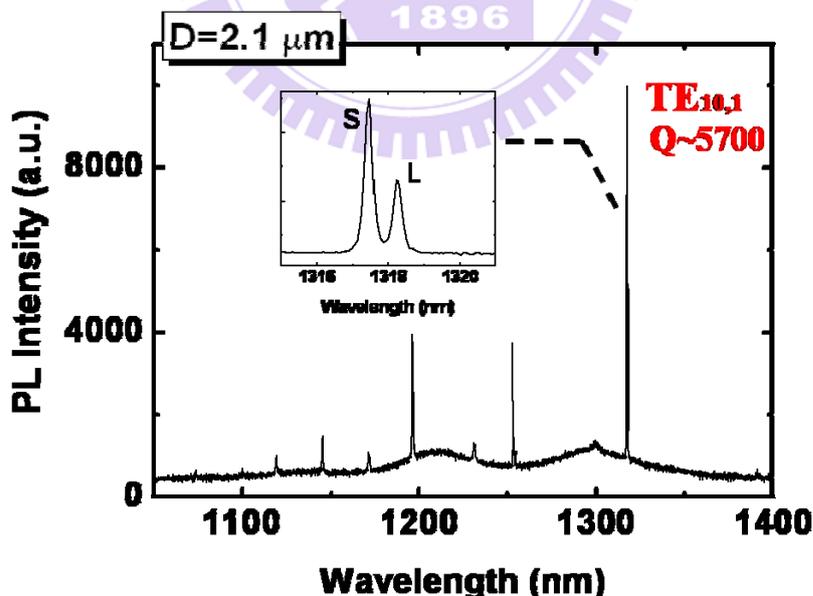
【圖 4-14】室溫下，量測到最高 Q 值(~6600)的 WGMs



#### 4-1-4 時間解析顯微光激螢光光譜 (Time-resolved $\mu$ PL)

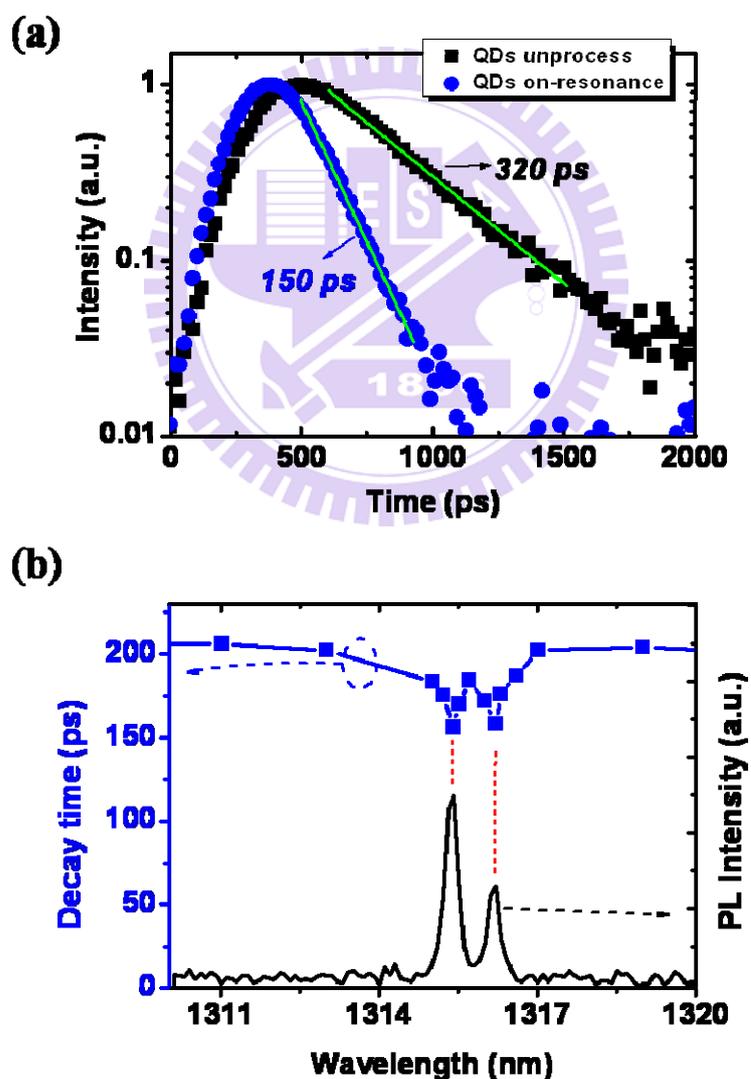
透過時間解析光譜量測，我們可以獲得半導體材料內載子複合的半衰期。為了討論微碟共振腔對其內部量子點的載子複合速率的影響，我們對 WGMs 進行時間解析光譜量測。實驗使用波長 750 nm 的鈦-藍寶石脈衝雷射當激發光源，其脈衝頻率為 80 MHz。而系統的時間解析受限於 PMT 偵測器的反應時間，其極限為 150 ps。圖 4-15 為直徑 2.1  $\mu\text{m}$  的微碟，我們針對位於 1318 nm 處， $\text{TE}_{10,1}$  且 Q 值 5700 的 WGMs 進行量測與分析。

圖 4-16(a) 為量子點與 WGMs 的螢光強度衰減曲線。對於未經製程過的量子點樣品，經由單一指數衰減擬合，分析其半衰期為 320 ps。文獻<sup>8</sup>



【圖 4-15】直徑 2.1  $\mu\text{m}$  的微碟共振腔，顯示位於 1318 nm 為  $\text{TE}_{10,1}$  且  $Q \sim 5700$  的 WGMs

指出，砷化銦量子點在低溫下其半衰期約 1.2 ns，而我們量測到的結果顯示在室溫下，載子的非輻射性複合效應非常顯著。對於  $TE_{10,1}$  的 S 模態，分析其半衰期為 150 ps，受限於系統解析，其半衰期應會更短。實驗結果顯示被包覆在共振腔內的量子點，會耦合至 WGMs 而增快其自發性輻射速率。圖 4-16(b) 為不同能量的時間解析光譜，可觀察到越接近 WGMs 的中心波長，其半衰期會越短。



【圖 4-16】微碟共振腔的 WGMs，其時間解析光譜的量測結果

對於此現象，已知為 Purcell 效應：當一雙能階系統(包含原子、量子井或量子點等)被包覆在共振腔內作為輻射光源時，會增益其自發性輻射速率。對於量子點的發光耦合至 WGMs，使其自發性輻射率增益的效應，可以用 Purcell factor 來表示：

$$F_p = \frac{3}{4\pi^2} \left( \frac{\lambda}{n} \right)^3 \frac{Q}{V}, \quad (4-4)$$

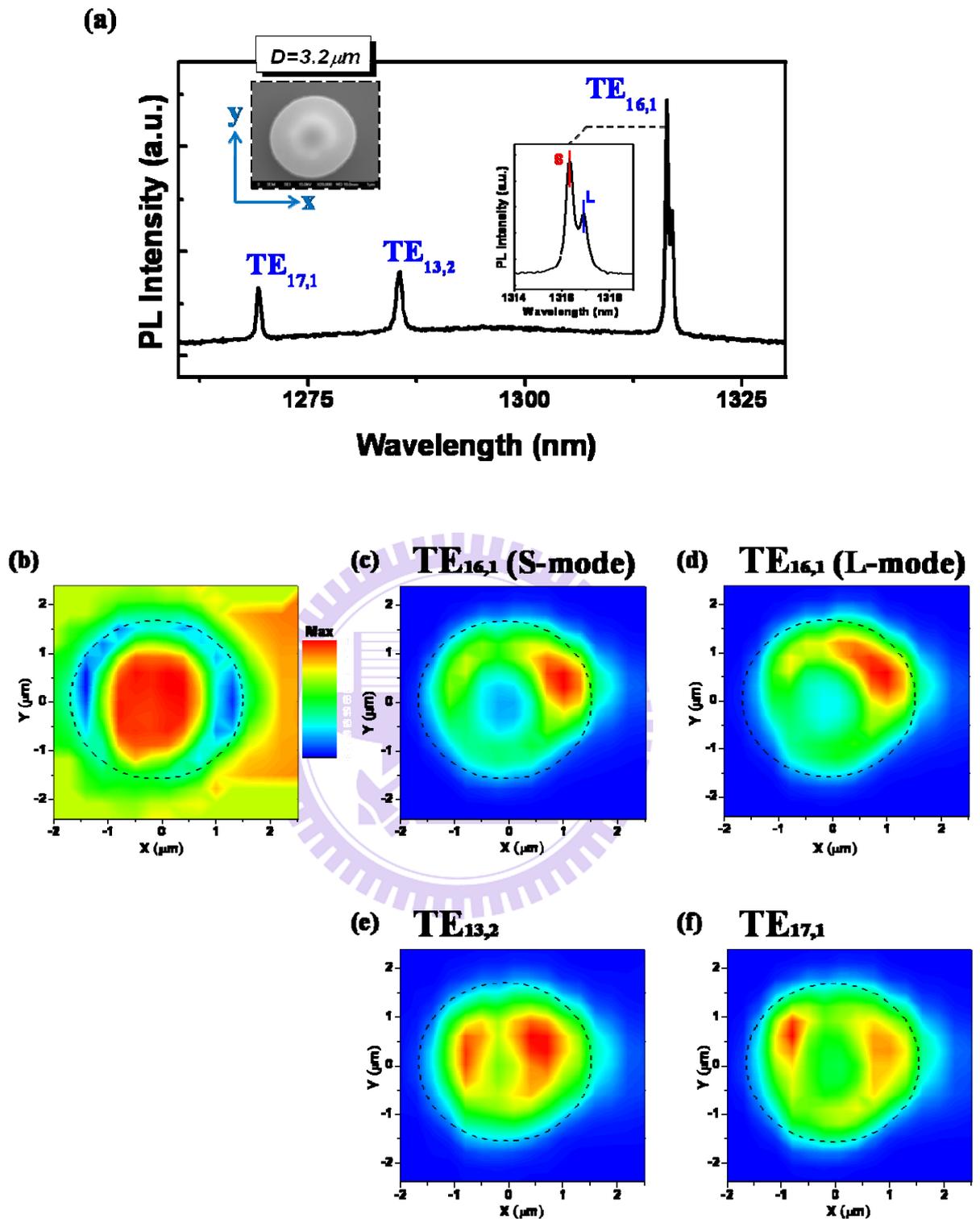
其中 Q 為實驗量測到的 Q 值，V 表示 WGMs 模態體積。實驗 Q 值為 5700，模態體積經由 3D-FDTD 計算出 TE<sub>10,1</sub> 模態體積約為  $4(\lambda/n)^3$ ，代入後算出  $F_p \sim 108$ ，表示在理想狀況下應有 108 倍的增益效應。實驗上，我們觀測到約兩倍自發性輻射率的增益效應，受限於系統解析與室溫下非自發性輻射效應的影響，導致我們量測出的值非真正的值，實際上其自發性輻射率的增益應更大。

## 4-2 空間解析量測

### 4-2-1 $\mu$ PL 之空間解析

本章節，為了瞭解微碟共振腔的 WGMs 螢光強度的空間分佈，我們使用  $\mu$ PL 進行空間上的解析量測，也就是映製(mapping)出微碟共振腔的 WGMs 螢光強度隨空間位置分佈的關係圖。我們透過兩種雷射激發的技術來進行空間上的映製，分別是局部激發和均勻激發。

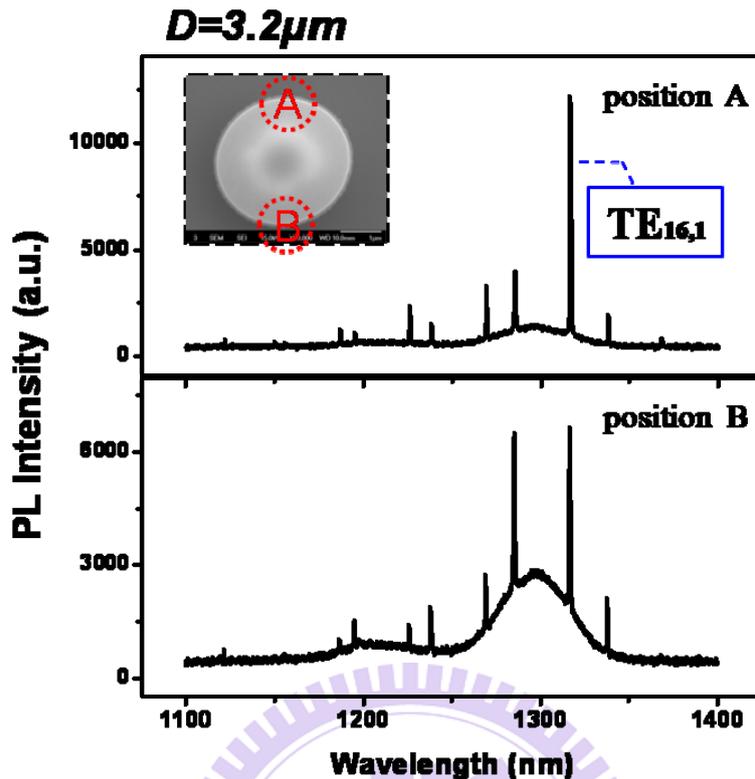
局部激發的 $\mu$ PL實驗架構如第3-3小節的圖3-4所描述，激發與收集樣品發出的螢光都是經由同一顯微物鏡，雷射光點大小約1~2  $\mu\text{m}$ 。圖4-17為使用局部激發所映製出微碟共振腔的螢光強度空間分佈的實驗結果。(a)為直徑3.2  $\mu\text{m}$ 微碟共振腔的SEM影像和其在基態附近的 $\mu$ PL光譜，位於1320、1290和1273 nm的模態分別為 $\text{TE}_{16,1}$ 、 $\text{TE}_{13,2}$ 和 $\text{TE}_{17,1}$ ，其中 $\text{TE}_{16,1}$ 明顯分裂為S和L模態。經由(b)的雷射反射頻譜，我們可以定位出微碟的空間位置，如圖中的虛線圓形。而(c)和(d)則為 $\text{TE}_{16,1}$ 的S和L模態的映製結果，可觀察到主要螢光強度分佈在微碟的圓周。實驗結果反應出，在微碟內，主要是由位於圓周區域的量子點耦合至此WGMs。由 $\text{TE}_{13,2}$ 的映製結果可看出，耦合至此徑向模態數為2的WGMs的量子點會由分佈在較內圈的量子點所貢獻，如圖(e)所示。而圖(f)為  $\text{TE}_{17,1}$ 的映製結果。



【圖 4-17】直徑 3.2  $\mu\text{m}$  的微碟共振腔，使用  $\mu\text{PL}$  局部激發所映製出的實驗結果

在進行  $\mu\text{PL}$  實驗量測時，常藉由移動樣品平台來達到訊號最佳化，然而在此過程中，我們注意到即使在相同的激發功率下，可以明顯觀察到當雷射激發在共振腔不同位置時，WGMs 也會有彼此消長的現象。圖 4-18 即為直徑  $3.2\ \mu\text{m}$  的微碟共振腔，雷射在不同激發位置 A 和 B 時的顯微光激螢光光譜。 $\text{TE}_{16,1}$  的模態在位置 A 時其絕對強度遠大於鄰近的模態，而在位置 B 時絕對強度則與鄰近模態接近。照理說，隨著激發光源位置的不同表示了激發在微碟共振腔的功率密度大小不同(例如打在側邊和正中央)，而所有模態的整體訊號應該要同時變大或變小。實驗觀察到在不同的收光位置，各模態的強度明顯不一致，顯示不同模態在微碟共振腔空間上的漏失方向不同，因此我們猜測不同模態數的 WGMs 主要在微碟共振腔漏失的方向是有選擇性的。



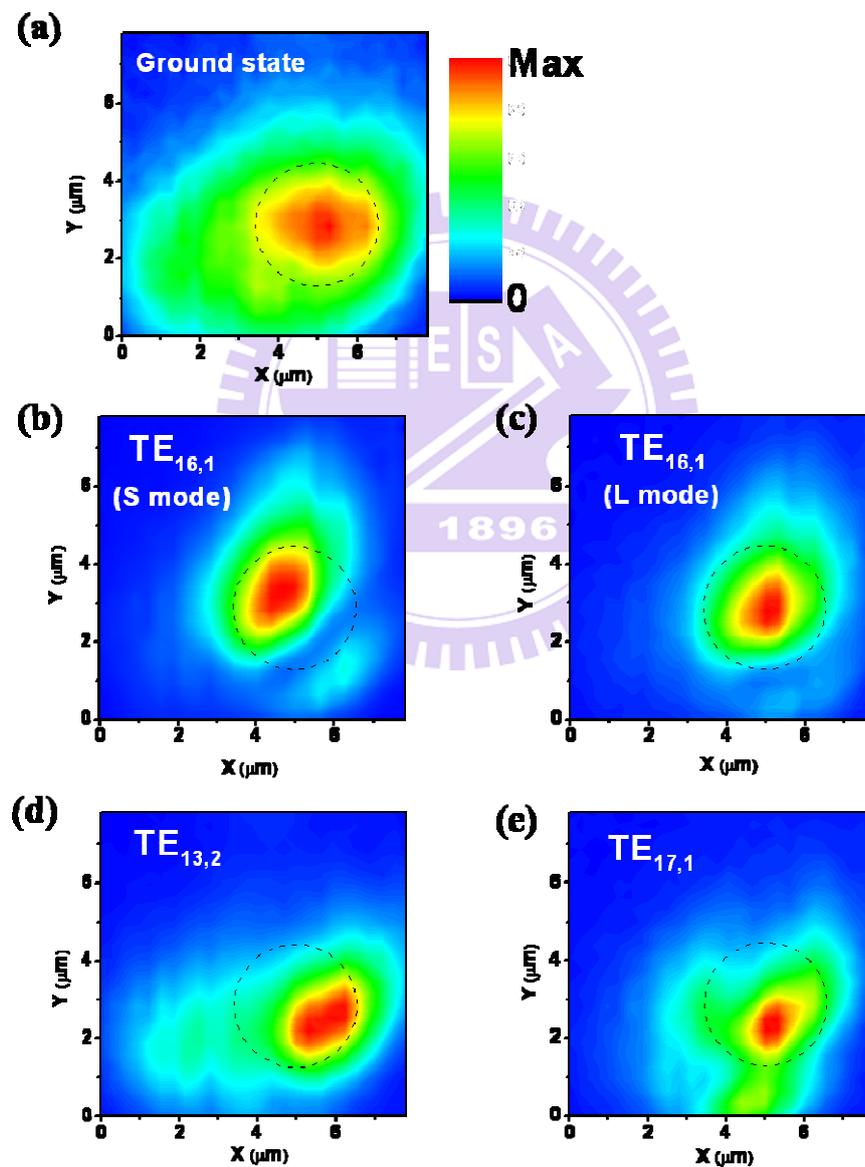


【圖4-18】雷射激發光源在直徑 $3.2\ \mu\text{m}$ 的微碟共振腔，不同激發位置時的 $\mu\text{PL}$ 光譜

實驗上，為了屏除激發光源位置改變的因素，我們使用均勻激發來激發微碟共振腔內的量子點，詳細實驗裝置圖見第3-4小節的圖3-6。使用焦距50 mm的透鏡對樣品均勻激發，樣品發出的螢光訊號經100X物鏡(焦距2 mm)收集後由焦距為200 mm的透鏡聚焦至 $75\ \mu\text{m}$ 的孔徑(pinhole)形成共軛焦。而後經由電控樣品的移動平台，以每移動固定的步距就量測一次譜圖達到映製的目的，我們所採用的空間步距為300 nm，掃圖範圍為 $7.8 \times 7.8\ \mu\text{m}^2$ 的空間面積，而系統的空間平面解析度為 $0.75\ \mu\text{m}$ 。

首先我們經由圖4-19(a)，即微碟共振腔內量子點的基態螢光強度對空間分佈的量測結果，可以獲得微碟共振腔的空間位置，如圖中的虛線圓形。

接著圖(b)(c)為 $TE_{16,1}$ 的S和L模態的映製結果，S模態主要強度分部位於共振腔的左上方，L模態則接近微碟共振腔的中心，而 $TE_{13,2}$ 和 $TE_{17,1}$ 較偏向右下方，如圖(d)(e)。實驗結果告訴了我們對於同一微碟共振腔，不同模態數的WGMs發光的方向是有選擇性的。

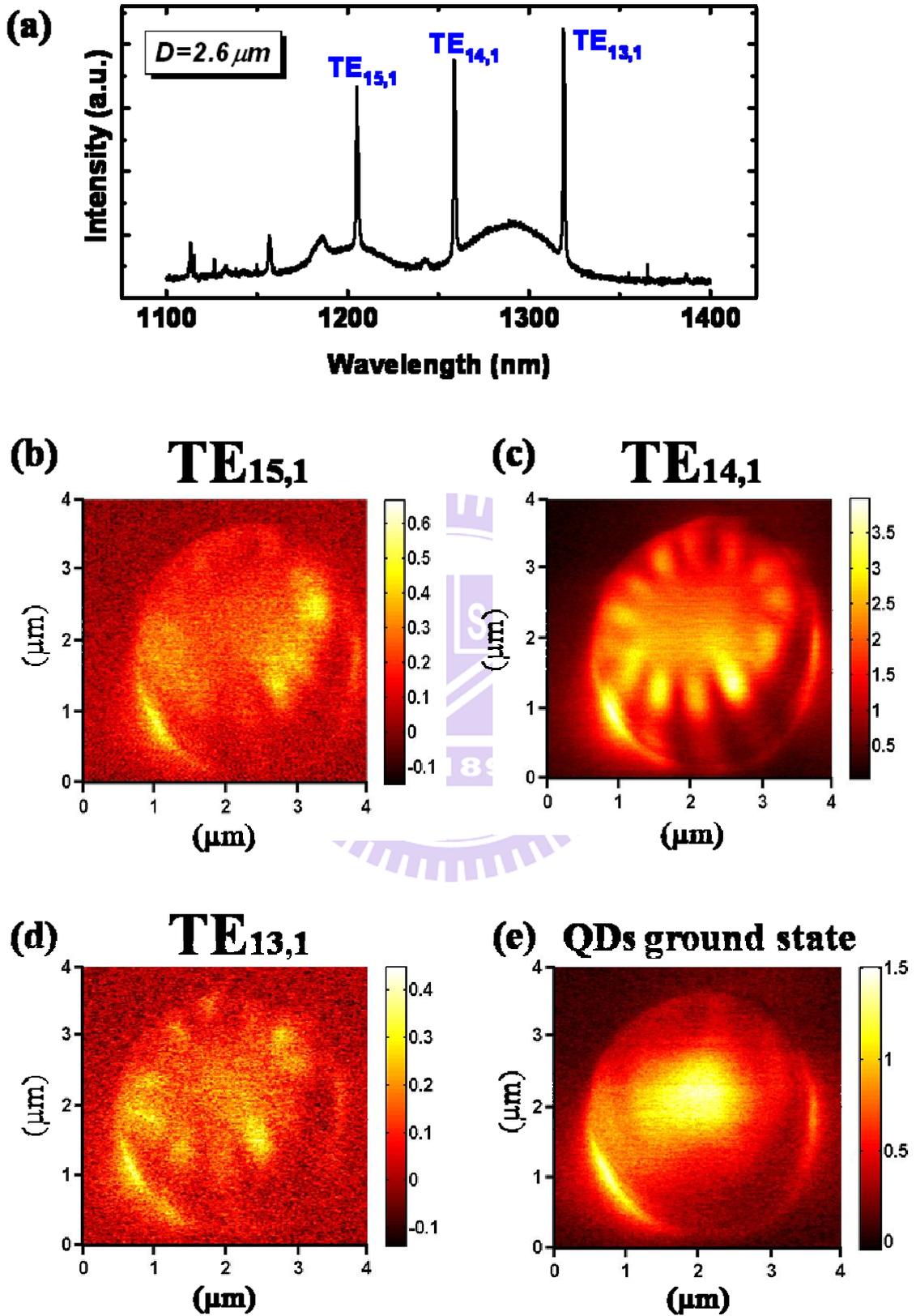


【圖 4-19】直徑 3.2  $\mu\text{m}$  的微碟共振腔，其各個 WGMs 皆有特定方向的螢光強度分佈

## 4-2-2 SNOM 之空間解析

雖然WGMs的模態數可經由理論分析如解析近似法或是三維有限時域差分法來判別，然而卻無實驗上的證據可以支持理論。A.M. Mintairov等人於2008年所發表的文獻<sup>12</sup>，可透過近場光學顯微術(Scanning near-field optical microscopy, SNOM) 將微碟共振腔的WGMs空間場型分佈和模態數解析出來。在本實驗，我們使用無鍍金屬的光纖探針進行SNOM量測。將波長為488 nm的氬離子( $\text{Ar}^+$ )雷射光源透過光纖探針而均勻的激發微碟共振腔內的量子點，而量子點螢光與共振腔耦合所形成的WGMs則透過探針收集後傳送到光譜儀分光且經偵測器分析。

圖4-20(a)是直徑2.6  $\mu\text{m}$ 微碟共振腔的 $\mu\text{PL}$ 譜圖和WGMs模態數，而(b) (c) (d)則為針對 $\text{TE}_{15,1}$ 、 $\text{TE}_{14,1}$  和  $\text{TE}_{13,1}$  模態進行近場光學量測的結果。我們可以觀察到主要的場型分佈在微碟共振腔的圓周上，證實這些模態確實是由繞著圓周形成駐波的WGMs。此場圖清楚顯示亮暗的光瓣(lobes)，其中又以 $\text{TE}_{14,1}$ 的近場影像最明顯。仔細計算其光瓣數共有14個亮瓣，證實其確為 $\text{TE}_{14,1}$ 的WGMs。而近場圖形的不對稱主要來自於光纖探針與微碟共振腔的上表面並非完全垂直而有傾斜，導致圖形會有形變。圖4-20(e)也對量子點的基態掃圖，顯示了量子點在微碟共振腔內發光的均勻性。



【圖 4-20】對直徑  $2.6 \mu\text{m}$  的微碟共振腔進行 SNOM 的量測結果

## 第五章 結論

本論文使用顯微光激螢光光譜技術研究微碟共振腔的光譜特徵。使用兩階段濕式蝕刻，成功的製備出直徑介於  $1.8\ \mu\text{m}$  至  $3.5\ \mu\text{m}$  之間大小的微碟共振腔。量測不同直徑大小的微碟共振腔，分析其模態能量間距與直徑倒數的關係，可以辨別譜線上觀察到的模態為耳語廊模態。藉由理論分析，如解析近似法的計算或三維有限時域差分法的模擬，我們可以精確地辨認出耳語廊模態的方位角與徑向模態數。改變激發光源強度量測，我們觀察到隨著激發功率逐漸增加，耳語廊模態螢光強度在低功率時會線性增加，而高功率時會有飽和現象；此外，耳語廊模態波長會有紅移現象，此乃因雷射對微碟共振腔的加熱效應，使折射率變化所導致；對於耳語廊模態的半高寬，隨著激發功率增加而有變窄的趨勢。室溫下，由時間解析量測，我們觀察到量子點自發性輻射效率的提升，證實量子點與共振腔的弱耦合效應。透過顯微光激螢光技術的空間解析量測，觀察到不同模態數的耳語廊模態主要在微碟共振腔漏失的方向是有選擇性的。同時也使用近場顯微光學技術量測耳語廊模態的場型分佈，並解析出其模態數，與理論的分析相當符合。

## 參考文獻

- [1] J. Renner, L. Worschech, A. Forchel, S. Mahapatra, and K. Brunner, “Whispering gallery modes in high quality ZnSe/ZnMgSSe microdisks with CdSe quantum dots studied at room temperature” *Appl. Phys. Lett.* **89**, 91105 (2006)
- [2] Zhaoyu Zhang, Lan Yang, Victor Liu, Ting Hong, Kerry Vahala, and Axel Scherer, “Visible submicron microdisk lasers” *Appl. Phys. Lett.* **90**, 111119 (2007)
- [3] J.S. Xia, K. Nemoto, Y. Ikegami, Y. Shiraki, and N. Usami, “Silicon-based light emitters fabricated by embedding Ge self-assembled quantum dots in microdisks” *Appl. Phys. Lett.* **91**, 11104 (2007)
- [4] S. L. McCall, A. F. J. Levi, R. E. Slusher, S. J. Pearton, and R. A. Logan, “Whispering-gallery mode microdisk lasers” *Appl. Phys. Lett.* **60**, 289 (1992)
- [5] Kartik Srinivasan, Matthew Borselli, Thomas J. Johnson, Paul E. Barclay, Oskar Painter, Andreas Stintz, and Sanjay Krishna, “Optical loss and lasing characteristics of high-quality-factor AlGaAs microdisk resonators with embedded quantum dots” *Appl. Phys. Lett.* **86**, 151106 (2005)
- [6] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu, “A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device” *Science* **290**, 2282
- [7] A. Kiraz, P. Michler, C. Becher, B. Gayral, A. Imamoglu, Lidong Zhang, E. Hu, W. V. Schoenfeld, and P. M. Petroff, “Cavity-quantum electrodynamics using a single InAs quantum dot in a microdisk structure” *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3932 (2001)
- [8] B. Gayral, J.-M. Gerard, B. Sermage, A. Lemaitre, and C. Dupuis, “Time-resolved probing of the Purcell effect for InAs quantum boxes in GaAs microdisks” *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2828 (2001)
- [9] Matthew Borselli, Thomas Johnson, and Oskar Painter, “Beyond the Rayleigh scattering limit in high-Q silicon microdisks: theory and Experiment” *Opt. Express* **13**, 1515(2005)
- [10] Chang, Richard, “Optical processes in microcavities” [ISBN 9810223447 ]
- [11] R. E. Slusher, A. F. J. Levi, U. Mohideen, S. L. McCall, S. J. Pearton, and R. A. Logan, “Threshold characteristics of semiconductor microdisk lasers” *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1310 (1993)

- [12] A. M. Mintairov, Y. Chu, Y. He, S. Blokhin, A. Nadtochy, M. Maximov, V. Tokranov, S. Oktyabrsky, and J. L. Merz, “High-spatial-resolution near-field photoluminescence and imaging of whispering-gallery modes in semiconductor microdisks with embedded quantum dots” *Phys. Rev. B* **77**, 195322 (2008)
- [13] Mee Koy Chin, Daniel Y. Chu, and Seng-Tiong Ho, “Estimation of the spontaneous emission factor for microdisk lasers via the approximation of whispering gallery modes” *J. Appl. Phys.* **75**, 3302 (1994)
- [14] E. Peter, I. Sagnes, G. Guirleo, S. Varoutsis, J. Bloch, A. Lemaitre, and P. Senellart, “High-Q whispering-gallery modes in GaAs/AlO<sub>x</sub> microdisks” *Appl. Phys. Lett.* **86**, 21103 (2005)
- [15] Brent E. Little and Juha-Pekka Laine, “Surface-roughness-induced contradirection coupling in ring and disk resonators” *Optics Letters* **22**, 1(1997)
- [16] N.V. Kryzhanovskaya et al., “Room-temperature 1.3- $\mu$ m lasing in a microdisk with quantum dots” *Semiconductor* **40**, 1101(2006)
- [17] P. Michler, A. Kiraz, Lidong Zhang, C. Becher, E. Hu, and A. Imamoglu, “Laser emission from quantum dots in microdisk structures” *Appl. Phys. Lett.* **77**, 184 (2000)
- [18] H. Cao, J. Y. Xu, W.H. Xiang, Y.Ma, S.-H. Chang, S.T.Ho, and G.S. Solomon, “Optically pumped InAs quantum dot microdisk lasers” *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3519 (2000)
- [19] S. A. Blokhin et al., “Optical Studies of Asymmetric-Waveguide Submonolayer InGaAs QD Microdisks Formed by Selective Oxidation” *Semiconductor* **40**, 476(2006)