

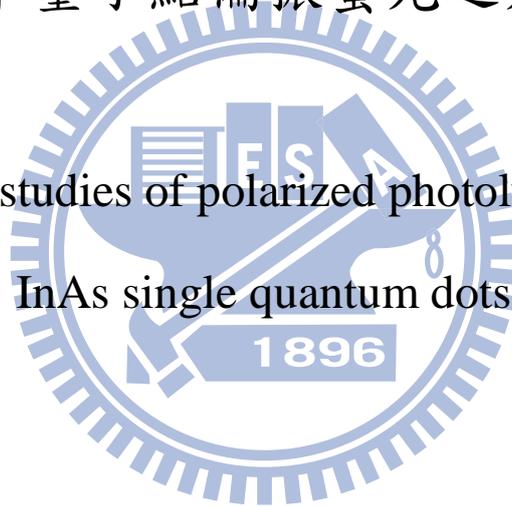
國立交通大學

電子物理系所

碩士論文

砷化銦單量子點偏振螢光之光譜研究

Spectroscopic studies of polarized photoluminescence of
InAs single quantum dots



研究生：周湘諭

指導教授：張文豪 教授

中華民國九十九年七月

砷化銦單量子點偏振螢光之光譜研究

Spectroscopic studies of polarized photoluminescence of InAs single quantum dots

研究生：周湘諭

Student : Hsiang-Yu Chou

指導教授：張文豪 教授

Advisor : Wen-Hao Chang

國立交通大學
電子物理系所
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

June 2010

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十九年七月

砷化銦單量子點偏振螢光之光譜研究

學生：周湘諭

指導教授：張文豪 博士

國立交通大學電子物理系所

摘要

砷化銦單量子點的激子螢光具有精細結構分裂以及偏振不對稱性，且兩者彼此相關。激子螢光的精細結構分裂源於量子點的形狀不對稱，而偏振不對稱性則是由平面上應變不對稱造成的重電洞態和輕電洞態混合所引起。本文中將根據 Bir-Pikus 漢米爾頓方程式，探討精細結構分裂、重電洞態和輕電洞態混合以及偏振不對稱性之間的相互作用。此外，我們可以利用外加水平磁場改變激子態的精細結構分裂，使其值由負值隨著磁場增加而變為正值。當精細結構分裂為零，激子態即為簡併。

Spectroscopic studies of polarized photoluminescence of InAs single quantum dots

Student : Hsiang-Yu Chou

Advisor : Wen-Hao Chang

Department of Electrophysics
National Chiao Tung University

ABSTRACT

The fine structure splitting (FSS) and polarization anisotropy (PA) of exciton emissions from single InAs/GaAs quantum dots (QDs) are investigated. A systematic correlation between the FSS and PA is observed. The excitonic FSS is attributed to the QD shape asymmetry reduction, while the PA is a direct consequence of the mixing between the heavy-hole (hh) and light-hole (lh) states due to the anisotropy in-plane strain distribution. Based on the formalism of the Bir-Pikus Hamiltonian, the interplay between the FSS, the hh-lh mixing, as well as the PA are discussed. An in-plane magnetic field is used to manipulate the excitonic FSS in QDs. We find that, for QDs with negative FSS, the degeneracy of the exciton states can be recovered under an in-plane magnetic field.

誌謝

進入交大六年的日子中，其中有三年半的回憶被實驗室所佔據。曾幾何時，我從手足無措地站在實驗室一角、什麼也不敢亂碰的小小專題生，變成研究生、又成為畢業生。這麼一路跌跌撞撞過來，我能從中成長，無疑要感謝這一路上許多老師、學長姐以及同學，不吝幫助我、熱心指導我。其中，我想對我的指導教授，張文豪老師，表達我最深的感激。謝謝您，毫無條件的引領我進入半導體光學這門研究，一點一滴的教導我許多專業知識、實驗技術和做事方法；當我遭遇瓶頸時，總能給我許多寶貴的意見，擴大我的視野，使我能夠完成我的研究，並從中學習成長。同時感謝林聖迪老師提供給我樣品、在研究上提供我不同的意見；也謝謝鄭舜仁老師，在理論計算部分的全力支持；謝謝李明知老師、周武清老師以及陳衛國老師，讓我在開會時能夠見識老師們看事情的角度，以及對許多問題的精闢見解，使我受益良多。

而每天一起努力一起歡笑的實驗室夥伴們，是另一股支持著我的力量。我首先要感謝家賢學長、林萱學姐和聖允學長，謝謝你們，除了在研究上一直支持我、幫助我、指導我，常常陪我奮鬥到天明，在生活上也總是關心我。真的謝謝你們這些日子以來的照顧，我一定會

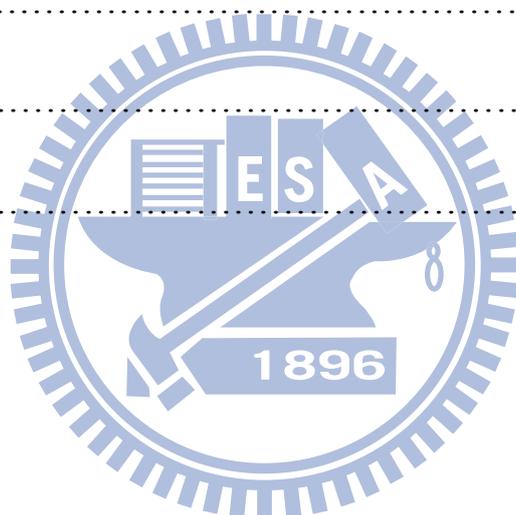
銘記在心；另外，汶哲、昱安、大雄、京玉、少甫、志豪、鴻璋、威宇、子德、阿馬、毛頭，在你們身上我看見了學長姐的氣度和風範，謝謝你們在研究方面都曾教導我也給予我意見；還有一起努力的同學們，士興、阿龐、家和、志豪、道偉和李芳葦，謝謝你們兩年來的陪伴，跟你們一起努力的感覺還不錯；還有可愛又刻苦耐勞的學弟們，健家、國榮、詠盛和峰菖，雖然只相處了一年，受到你們的幫忙還真不少，謝謝你們。

最後，我想謝謝一個總是陪伴我、聽我抱怨、心疼我熬夜的人——哲緯，很幸運在這最後一年遇見你，謝謝你對我的細心關懷。另外，特別感謝默默鼓勵我支持我的家人，謝謝你們的體諒，讓我可以無後顧之憂的完成我的學業。雖然是個離家的遊子，但我總能感覺到溫暖。

目 錄

中文摘要.....	i
英文摘要.....	ii
誌謝.....	iii
目 錄.....	v
圖目錄.....	vii
第一章 序論.....	1
1.1 前言.....	1
1.2 研究動機.....	2
1.3 章節概要.....	4
第二章 理論背景.....	5
2.1 光激螢光的偏振性.....	5
2.2 電子-電洞交換作用 (Electron-hole exchange interaction).....	7
2.3 價電帶混合效應 (Valence-band mixing).....	10
2.4 賽曼效應 (Zeeman effect)	14
第三章 樣品與實驗裝置.....	16
3.1 樣品結構.....	16
3.2 顯微光激螢光 (Micro Photoluminescence) 量測系統.....	17

第四章光譜分析與討論.....	21
4.1 單量子點顯微光激螢光光譜.....	21
4.2 單量子點偏振螢光光譜	27
4.2.1 精細結構分裂.....	27
4.2.2 偏振不對稱性 (Polarization anisotropy).....	31
4.3 單量子點磁場顯微螢光光譜.....	41
第五章結論.....	50
附錄.....	51
參考資料.....	52



圖目錄

【圖 1-1】	量子點中的電子和電洞復合發出右旋光($\sigma+$)或左旋光($\sigma-$)。.....	3
【圖 1-2】	理想狀態下，量子點的雙激子系統。.....	3
【圖 2-1】	量子點激子的光激螢光模擬光譜；右上角插圖：激子螢光強度偏振圖。.....	10
【圖 2-2】	在價電帶混合效應的影響下，量子點激子的光激螢光模擬光譜；右上角插圖為激子螢光強度偏振圖。.....	13
【圖 3-1】	砷化銦單量子點樣品結構圖。.....	17
【圖 3-2】	顯微光激螢光量測系統實驗裝置。.....	20
【圖 3-3】	樣品於水平磁場中之示意圖。.....	20
【圖 4-1】	量測奈米孔穴 A 得到的顯微螢光光譜。.....	22
【圖 4-2】	不同雷射激發功率下，量測奈米孔穴 A 得到的顯微螢光光譜。.....	24
【圖 4-3】	不同雷射激發功率下，在奈米孔穴 A 中，量子點的顯微螢光光譜。.....	25
【圖 4-4】	單量子點激子複合物的雷射激發功率對螢光強度關係圖。.....	26
【圖 4-5】	量子點 B 的水平(π_x)和垂直(π_y)線偏振光激螢光光譜。.....	27
【圖 4-6】	在不同電子-電洞交換能及量子點對稱性的情況下，單量子點中，激子和雙激子的能階示意圖。....	29
【圖 4-7】	不同量子點的偏振螢光光譜；圖(a)、圖(b)和圖(c)分別為量子點 B、量子點 C 和量子點 D 的光譜。.....	30
【圖 4-8】	量子點的激子能量對精細結構分裂關係圖。.....	31
【圖 4-9】	在量子點 B 中，偏振角對激子螢光強度關係圖(a)和極化圖(b)。以及量子點偏振方向示意圖(c)。.....	32
【圖 4-10】	在量子點 B 中，改變不同偏振角時，激子與正激子的螢光強度變化圖。.....	34

【圖 4-11】 (a) 在量子點 D 中，偏振角對激子螢光強度關係圖和極化圖。以及(b) 量子點 C 中，偏振角對激子螢光強度關係圖和極化圖。.....	35
【圖 4-12】 量子點的激子能量對偏振不對稱性關係圖。.....	36
【圖 4-13】 單量子點激子螢光之偏振不對稱性對精細結構分裂關係圖。.....	37
【圖 4-14】 量子點 E 在 (a) 0T、3T 以及 6T 時的顯微螢光光譜。(b) 不同磁場下所對應之螢光訊號的峰值能量。.....	42
【圖 4-15】 量子點 E 中，磁場對激子能量關係圖以及理論模擬結果。.....	43
【圖 4-16】 量子點 F 在 (a) 0T、3T 以及 6T 時的顯微螢光光譜。(b) 不同磁場下所對應之螢光訊號的峰值能量。.....	44
【圖 4-17】 量子點 F 中，磁場對激子能量關係圖以及理論模擬結果。.....	45
【圖 4-18】 量子點 C 在 (a) 0T、3T 以及 6T 時的顯微螢光光譜。(b) 不同磁場下所對應之螢光訊號的峰值能量。.....	46
【圖 4-19】 量子點 C 中，磁場對激子螢光精細結構分裂關係圖。	46
【圖 4-20】 量子點 C 中，磁場對雙激子能量關係圖以及理論模擬結果。.....	47

第一章 序論

1.1 前言

近三十年來，奈米科技的發展為一大熱門議題，其應用對於人們的日常生活也造成了全面性的影響。隨著元件逐漸微型化，最後至奈米尺度，其結構已不再遵循古典物理，而是由微觀的量子物理來決定。奈米科技發展至今，已在許多傳統元件有所應用，例如發光二極體[1][2]、雷射[3]-[5]、光偵測器[6][7]以及電晶體[8]。接下來，發展操控單一原子、單一電子以及單一光子的量子科技，將成為新興的熱門議題。

在量子科技的應用中，以量子計算和量子通訊等量子資訊科學的發展最為人所注目。我們知道數位化資訊處理的精髓是將資訊化簡為二進位的方式表現，因此二進位的 0 和 1 形成了資訊處理的最小單位。而量子資訊的最小處理單位稱為量子位元 (Quantum bit, Qubit)，以量子位元的量子態 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle$ 代表資訊處理的兩個狀態。為了實現量子計算，量子位元必須在計算過程中保持其量子特性。與古典位元最大的不同在於，量子態具有疊加性和糾纏態兩大特性，因此提升了資訊儲存空間和計算速度。

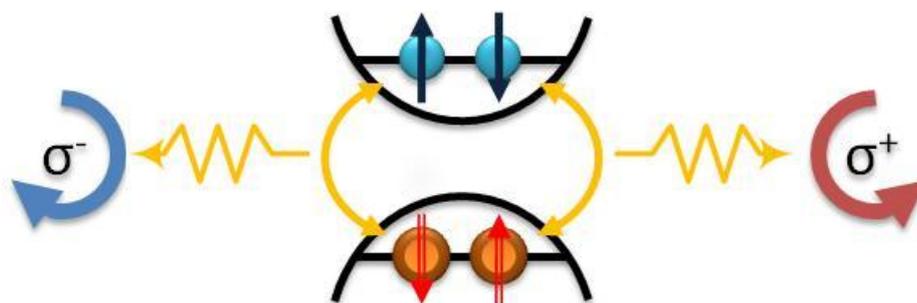
1.2 研究動機

由於在量子物理系統中，量子同調性非常容易受干擾而被破壞，因此尋找一個能夠滿足量子位元以及量子計算要求的物理系統，便成了量子資訊科技發展的一大挑戰。量子點系統[9]，就是一個具有發展潛力的系統。由於量子點為三個方向皆被侷限的零維結構，電子在量子點中受到量子侷限 (Quantum confinement) 效應，使得電子能量分布呈現不連續性，如同在原子中一般，因此量子點又稱人造原子。

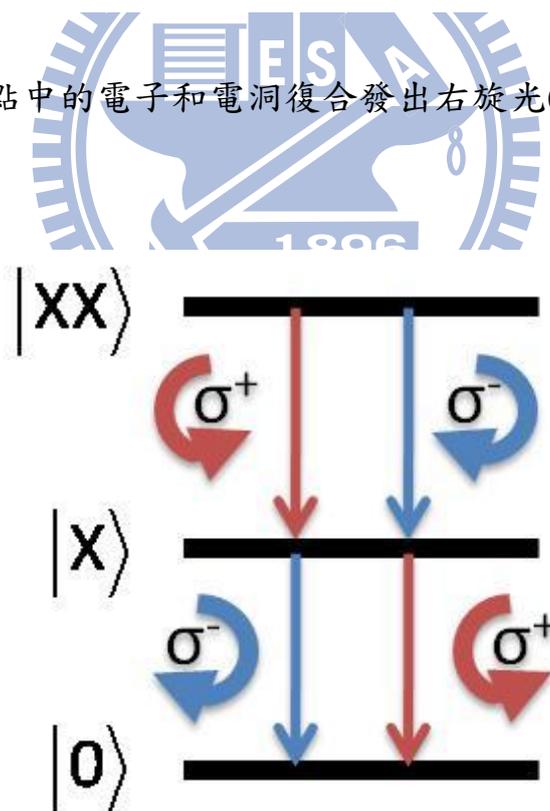
我們可以以量子點中的激子 (Exciton) 定義量子態。當量子點中同時存在電子和電洞，兩者會因庫倫作用力束縛而形成激子，並經由復合而發出螢光。在理想的量子點中，激子可與角動量+1 或-1 的光子耦合，而發出右旋光或左旋光，如【圖 1-1】。當量子點中同時有兩個電子及電洞受激發後會形成雙激子，此時將先後釋出左旋和右旋的光子，稱為串聯放射 (Cascade emission)。若激子為簡併態其發光順序可能是左旋光先、右旋光後，或是右旋光先、左旋光後；其不可分辨的關係，將使先後釋放的螢光形成糾纏 (Entanglement)，如【圖 1-2】。

然而實驗結果顯示，量子點的激子螢光為線性偏振光，且其能量並非簡併態，而是存在有精細結構分裂 (Fine structure splitting)。因此，在接下

來的實驗中我們將探討影響精細結構分裂的因素，並利用外加水平磁場補償精細結構分裂，使量子點激子變回簡併態。



【圖1-1】 量子點中的電子和電洞復合發出右旋光(σ^+)或左旋光(σ^-)。



【圖1-2】 理想狀態下，量子點的雙激子系統。

1.3 章節概要

本論文以砷化銦單量子點的光譜量測及分析為主，並以理論模擬為輔，分析單量子點中，影響激子態的種種作用。首先，第一章將介紹研究單量子點的動機以及重要性。第二章則是本實驗所使用的樣品結構簡介以及實驗裝置說明。第三章為實驗結果分析。第三章一開始將藉由單量子點螢光光譜分析和理論推導，說明電子-電洞交換作用；接著，由偏振螢光光譜，我們推測價電帶混合效應的存在，也同樣地經由理論模擬證實了我們的推測。最後，利用外加水平磁場，我們改變了激子態結構，使其形成簡併態。在第四章中。我們將對本實驗的量測結果做一總結。



第二章 理論背景

2.1 光激發光的偏振性

激子由傳導帶的電子及價電帶的電洞所構成；其中，電子自旋態以 s_e 表示且其在 z 方向投影為 $|s_e = \pm \frac{1}{2}\rangle$ ，而價電帶的電洞自旋態以 j 和 m_h 表示為 $|j, m_h\rangle$ ，其中 $j=3/2, 1/2$ ， m_h 則為 j 在 z 方向的投影量。輕電洞和重電洞態可表示為[11]

$$\begin{aligned}
 \left| \frac{3}{2}, +\frac{3}{2} \right\rangle_v &= -\uparrow \frac{|X+iY\rangle}{\sqrt{2}} \\
 \left| \frac{3}{2}, +\frac{1}{2} \right\rangle_v &= -\downarrow \frac{|X+iY\rangle}{\sqrt{6}} + \uparrow \sqrt{\frac{2}{3}} |Z\rangle \\
 \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle_v &= +\uparrow \frac{|X-iY\rangle}{\sqrt{6}} + \downarrow \sqrt{\frac{2}{3}} |Z\rangle \\
 \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle_v &= +\downarrow \frac{|X-iY\rangle}{\sqrt{2}}
 \end{aligned} \tag{2.1}$$

在此將激子的自旋態表示為 $(s_e; m_h)$ ，則重電洞激子和輕電洞激子的自旋態分別為 $(\pm \frac{1}{2}; \pm \frac{3}{2})$ 和 $(\pm \frac{1}{2}; \pm \frac{1}{2})$ 。而激子中復合發光的機率可經由費米黃金定律

(Fermi's golden rule) 得知為

$$I_{PL}(\hbar\omega) \propto \langle f | \hat{e} \cdot \vec{p} | i \rangle^2 \tag{2.2}$$

其中， $\hat{e} = \hat{x}\cos\phi + \hat{y}\sin\phi$ 為 xy 平面上的單位向量，與激子發光的偏振方向有關； $|i\rangle$ 、 $|j\rangle$ 為光學躍遷的初狀態和末狀態；而 \vec{p} 為動量算子 (Momentum operator)。在激子復合發光的過程中，其初狀態和末狀態分別為

$$\begin{aligned} |i\rangle &= |e;h\rangle = \chi_e(r)|s_e\rangle\chi_h(r)|m_h\rangle, \\ |f\rangle &= |0\rangle, \end{aligned} \quad (2.3)$$

其中， $\chi_e(r)$ 、 $\chi_h(r)$ 分別為電子態和電洞態的波包函數 (Envelop function)。

因此，激子的偶極矩陣元素 (Dipole matrix elements)可由關係式

$\langle 0|\hat{e}\cdot\vec{p}|e;h\rangle = \langle c|\hat{e}\cdot\vec{p}|v\rangle$ 求得[12]。以重電洞明激子 (Bright exciton) 為例，其總

自旋 $s_e + m_h = \pm 1$ ，而偶極矩陣元素可計算得到

$$\begin{aligned} \left\langle 0\left|\vec{p}\right|\frac{1}{2};+\frac{3}{2}\right\rangle &= \left\langle \frac{3}{2},-\frac{3}{2}\left|\vec{p}\right|S\downarrow\right\rangle \\ &= \left\langle \frac{X+iY}{\sqrt{2}}\downarrow\left|\vec{p}\right|S\downarrow\right\rangle \\ &= (-iP_0)\frac{\hat{x}+i\hat{y}}{\sqrt{2}} \end{aligned} \quad (2.4)$$

其中， $\langle S|p_x|X\rangle = \langle S|p_y|Y\rangle = \langle S|p_z|Z\rangle = im_0P/\hbar = iP_0$ ， P 為肯恩參數 (Kane parameter)。則重電洞激子和輕電洞激子發生復合發光的躍遷率為

$$\begin{aligned} \hat{e}\cdot\left\langle 0\left|\vec{p}\right|\frac{1}{2};\pm\frac{3}{2}\right\rangle &= (-iP_0)\left(\hat{e}\cdot\frac{\pm(\hat{x}+i\hat{y})}{\sqrt{2}}\right) \\ &= (-iP_0)\left(\hat{e}\cdot\frac{\pm e^{\pm i\phi}}{\sqrt{2}}\right), \\ \hat{e}\cdot\left\langle 0\left|\vec{p}\right|\pm\frac{1}{2};\pm\frac{1}{2}\right\rangle &= (-iP_0)\left(\hat{e}\cdot\frac{\pm e^{\pm i\phi}}{\sqrt{6}}\right). \end{aligned} \quad (2.5)$$

由上式可知，當總自旋 $s_e + m_h = \pm 1$ ，態 $(s_e; m_h)$ 的激子會與偏振態 σ^\pm 的圓偏振光耦合，因此其光激螢光為圓偏振。

2.2 電子-電洞交換作用 (Electron-hole exchange interaction)

在無外加磁場的情況下，量子點中的電子和電洞會因為電子-電洞交換作用而耦合。根據文獻[13][16]此交換作用可分為兩部份討論—短程 (Short range) 作用和長程 (Long range) 作用。短程作用發生在電子和電洞存在於同一個單位晶胞 (Unit cell) 時；反之，當電子和電洞在不同晶胞時，其交換作用可視為兩個偶極間的庫倫作用，此時的交換能稱為長程作用。在此，首先考慮短程作用，此作用來自電子自旋和電洞自旋間的相互作用力，其漢米爾頓 (Hamiltonian) 方程式可表示為

$$H_{ex} = -\frac{2}{3} \delta_{SR} \hat{J}_h \cdot \hat{S}_e \quad (2.6)$$

$$= -\frac{2}{3} \delta_{SR} \left[\frac{1}{2} (J_{h+} S_{e-} + J_{h-} S_{e+}) + J_{h,z} S_{e,z} \right]$$

其中 δ_{SR} 為交換耦合常數，另外 $J_{h\pm} = J_{h,x} \pm iJ_{h,y}$ 、 $S_{e\pm} = S_{e,x} \pm iS_{e,y}$ ，這裡引入了包立矩陣 (Pauli matrix) σ_x 、 σ_y 和 σ_z ，滿足 $S_{e,i} = \sigma_i / 2$ ，包立矩陣表示如下

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

而 z 方向在接下來的討論中皆定義為磊晶成長方向。此外，當電洞本徵函數的基底為 $|\pm 3/2\rangle$ 和 $|\pm 1/2\rangle$ ，其角動量運算子 \hat{J}_h 的分量 $J_{h,x}$ 、 $J_{h,y}$ 和 $J_{h,z}$ 分別是

$$J_{h,x} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \sqrt{3} & 0 & 0 \\ \sqrt{3} & 0 & 2 & 0 \\ 0 & 2 & 0 & \sqrt{3} \\ 0 & 0 & \sqrt{3} & 0 \end{pmatrix}, \quad J_{h,y} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i\sqrt{3} & 0 & 0 \\ i\sqrt{3} & 0 & -2i & 0 \\ 0 & 2i & 0 & -i\sqrt{3} \\ 0 & 0 & i\sqrt{3} & 0 \end{pmatrix}, \quad J_{h,z} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 3 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -3 \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

由(2.6)式、(2.7)式和(2.8)式，可得短程電子電洞交換作用的漢米爾頓方程式

為

$$H_{ex}^{SR} = \frac{\delta_{SR}}{2} \begin{pmatrix} -I_{hh} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & I_{hh} & \frac{-2}{\sqrt{3}}I_{hl} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{-2}{\sqrt{3}}I_{hl} & \frac{1}{3}I_{ll} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{3}I_{ll} & \frac{-4}{3}I_{ll} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{-4}{3}I_{ll} & \frac{1}{3}I_{ll} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{-1}{3}I_{ll} & \frac{-2}{\sqrt{3}}I_{hl} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{-2}{\sqrt{3}}I_{hl} & I_{hh} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -I_{hh} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} (+\frac{1}{2}, +\frac{3}{2}) \\ (-\frac{1}{2}, +\frac{3}{2}) \\ (+\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}) \\ (-\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}) \\ (+\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}) \\ (-\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}) \\ (+\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}) \\ (-\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}) \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

其中，重疊積分 (Overlap integral) $I_{\alpha\beta}$ 定義為

$$I_{\alpha\beta} = \langle \chi_e | \chi_{(\alpha)h} \rangle \langle \chi_e | \chi_{(\beta)h} \rangle, \quad \alpha, \beta = h, l \quad (2.10)$$

首先，若僅考慮重電洞的部份，則(2.9)式可簡化為

$$H_{ex,hh}^{SR} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\delta_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} (-\frac{1}{2}, +\frac{3}{2}) \\ (+\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}) \\ (+\frac{1}{2}, +\frac{3}{2}) \\ (-\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}) \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

其中 $\delta_0 = I_{hh}\delta_{SR}$ 。由式可以知道，短程交換作用會造成重電洞激子的能階分

裂，使總自旋 $|M\rangle = |s_e + m_h\rangle = |\pm 1\rangle$ 的明激子和 $|M\rangle = |\pm 2\rangle$ 的暗激子 (Dark exciton)

能階分開 δ_0 。而長程交換作用的漢米爾頓方程式為

$$H_{ex,hh}^{LR} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 & \Delta_1 & 0 & 0 \\ \Delta_1 & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & \Delta_2 \\ 0 & 0 & \Delta_2 & -\Delta_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} | +1 \rangle \\ | -1 \rangle \\ | +2 \rangle \\ | -2 \rangle \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

此時，重電洞明激子中原本簡併在一起的 $| \pm 1 \rangle$ 能態會因為長程交換作用而混

合，其受到短程和長程作用的綜合影響可表示為

$$\mathbf{H}_{\text{ex, hh}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0 + \Delta_0 & \tilde{\Delta}_1 \\ \tilde{\Delta}_1^* & \delta_0 + \Delta_0 \end{pmatrix} \begin{matrix} | +1 \rangle \\ | -1 \rangle \end{matrix} \quad (2.13)$$

這裡引入了量子點形狀不對稱的影響，將 $\tilde{\Delta}_1 = \Delta_1 e^{-2i\theta_d}$ 代入，其中 θ_d 代表量子點的伸長 (Elongation) 方向。解析(2.13)式的本徵值 E_{\pm} 和本徵態 $|\Phi_{\pm}\rangle$ 結果

如下

$$E_{\pm} = \frac{(\delta_0 + \Delta_0) \pm \Delta_1}{2} \quad (2.14)$$

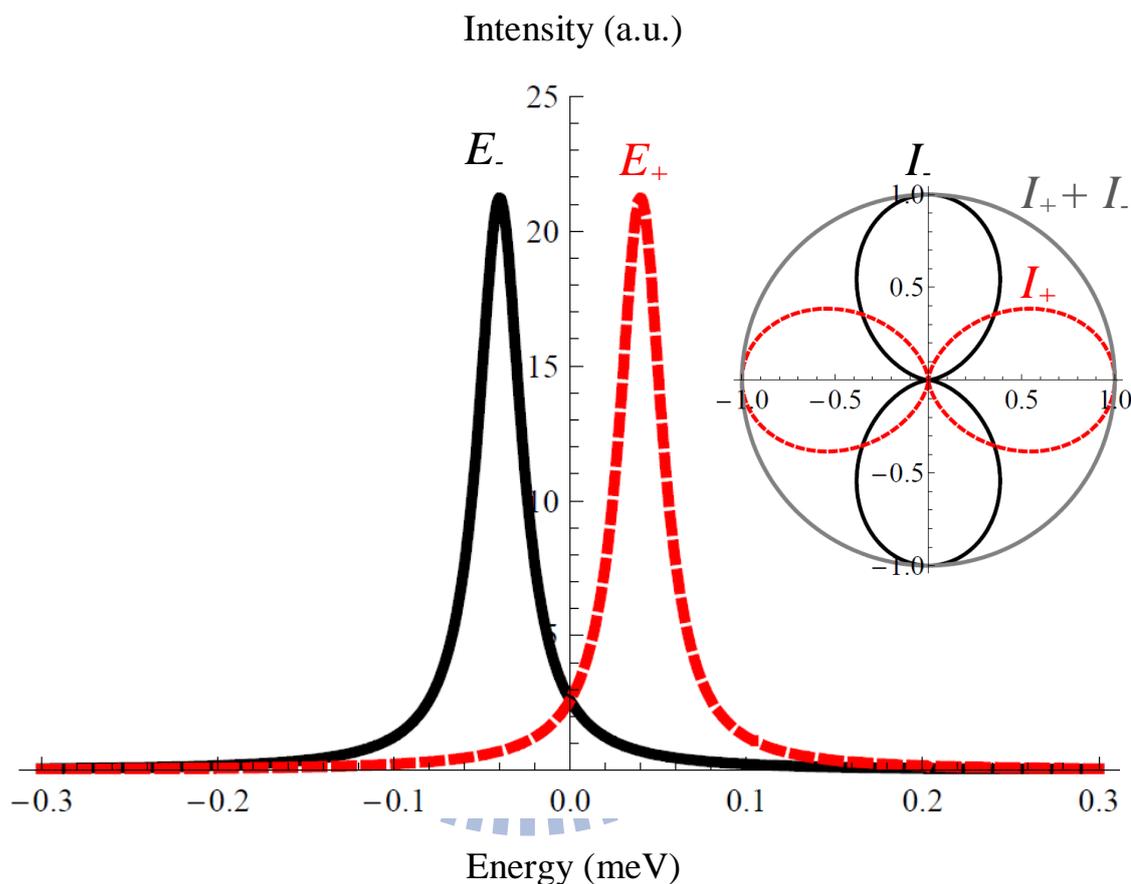
$$|\Phi_{\pm}\rangle = \frac{| +1 \rangle \pm e^{2i\theta_d} | -1 \rangle}{\sqrt{2}} \quad (2.15)$$

利用(2.5)式激子復合發光躍遷率的計算，得到螢光強度 I_{\pm} 為

$$\begin{aligned} I_-(\phi) &= \left| \hat{e} \cdot \langle 0 | \vec{p} | \Phi_- \rangle \right|^2 = \left| \hat{e} \cdot \frac{-iP_0}{\sqrt{2}} \left(\frac{+e^{+i\phi}}{\sqrt{2}} - e^{2i\theta_d} \frac{-e^{-i\phi}}{\sqrt{2}} \right) \right|^2 \\ &= \left| -iP_0 e^{i\theta_d} \left(\frac{e^{+i(\phi-\theta_d)}}{2} + e^{-i(\phi-\theta_d)} \right) \right|^2 \\ &= P_0^2 \cos^2(\phi - \theta_d), \\ I_+(\phi) &= \left| \hat{e} \cdot \langle 0 | \vec{p} | \Phi_+ \rangle \right|^2 = \left| \hat{e} \cdot \frac{-iP_0}{\sqrt{2}} \left(\frac{+e^{+i\phi}}{\sqrt{2}} + e^{2i\theta_d} \frac{-e^{-i\phi}}{\sqrt{2}} \right) \right|^2 \\ &= P_0^2 \sin^2(\phi - \theta_d). \end{aligned} \quad (2.16)$$

利用(2.14)式、(2.15)式和(2.16)式，可以模擬量子點激子螢光光譜及偏振方向變化對螢光強度的影響；假設 $\Delta_0 = 0.1 \text{ meV}$ 、 $\delta_0 = 0.1 \text{ meV}$ 、 $\Delta_1 = 0.08 \text{ meV}$ 以及量子點伸長方向沿 $\theta_d = 90^\circ$ ，則模擬結果如【圖 2-1】。在電子-電洞交換作用力的影響下，重電洞明激子的 $|\pm 1\rangle$ 態會混合成本徵態 $|\Phi_{\pm}\rangle$ ，由模擬之螢光光譜，我們可以看出激子螢光訊號會出現在兩個不同能量處，分別為 E_{\pm}

和 E_- ，其能量差即為 $\Delta_1 = 0.08 \text{ meV}$ 。而右上角的插圖則顯示，激子螢光為相互正交的線偏振。其中能量較低的基態 ($|\Phi_- \rangle$) 螢光，偏振方向與量子點伸長的方向一致，也就是 $\theta_d = 90^\circ$ 。



【圖2-1】 量子點激子的光激螢光模擬光譜；右上角插圖為激子螢光強度偏振圖。

2.3 價電帶混合效應 (Valence-band mixing)

由於量子點受應力後，會造成的價電帶混合效應[10]，同時也會影響激子螢光偏振。因此本節中我們將利用 Luttinger-Kohn 和 Bir-Pikus 的漢米爾頓方程式[11]，觀察重電洞態和輕電洞態混合後，對激子發光過程的影響。

若利用電洞本徵函數 $|+3/2\rangle$ 、 $|-1/2\rangle$ 、 $|+1/2\rangle$ 和 $|-3/2\rangle$ 作為基底，則其價電帶受應力作用的漢米爾頓方程式可寫為

$$H_v = \begin{pmatrix} P+Q & R & -S & 0 \\ R^* & P-Q & 0 & S \\ -S^* & 0 & P-Q & R \\ 0 & S^* & R^* & P+Q \end{pmatrix} \begin{matrix} |+\frac{3}{2}\rangle \\ |-\frac{1}{2}\rangle \\ |+\frac{1}{2}\rangle \\ |-\frac{3}{2}\rangle \end{matrix} \quad (2.17)$$

其中，非對角線項 $R = R_k + R_\varepsilon$ 、 $S = S_k + S_\varepsilon$ ，且

$$\begin{aligned} R_k &= -\frac{\hbar}{2m_0} \sqrt{3} [\gamma_2 (k_x^2 - k_y^2) - 2i\gamma_3 k_x k_y], \\ R_\varepsilon &= \frac{\sqrt{3}b}{2} (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}) - id\varepsilon_{xy}, \\ S_k &= \frac{\hbar}{m_0} \sqrt{3} i\gamma_3 (k_x - ik_y), \\ S_\varepsilon &= -d(\varepsilon_{xz} - i\varepsilon_{yz}). \end{aligned} \quad (2.18)$$

(2.18) 式中， γ_1 、 γ_2 及 γ_3 為 Luttinger 參數， k_x 、 k_y 及 k_z 為電子波向量，因此 R_k 和 S_k 項與動能有關；而 ε_{ij} 為應變，因此 R_ε 和 S_ε 項與應變有關。由於 S 值通常小於 R 值，若忽略不計 S 值，則(2.17)式可簡化為

$$H_v = \begin{pmatrix} P+Q & R & 0 & 0 \\ R^* & P-Q & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P-Q & R \\ 0 & 0 & R^* & P+Q \end{pmatrix} \begin{matrix} |+\frac{3}{2}\rangle \\ |-\frac{1}{2}\rangle \\ |+\frac{1}{2}\rangle \\ |-\frac{3}{2}\rangle \end{matrix} \quad (2.19)$$

接著置換(2.19)式中的基底，則可將 H_v 改寫為

$$H_{BP} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & \rho e^{-2i\theta_s} \\ 0 & 0 & \rho e^{+2i\theta_s} & 0 \\ 0 & \rho e^{-2i\theta_s} & \Delta_{lh} & 0 \\ \rho e^{+2i\theta_s} & 0 & 0 & \Delta_{lh} \end{pmatrix} \begin{matrix} |+\frac{3}{2}\rangle \\ |-\frac{3}{2}\rangle \\ |+\frac{1}{2}\rangle \\ |-\frac{1}{2}\rangle \end{matrix} \quad (2.20)$$

其中， Δ_{lh} 為重電洞和輕電洞間的能階差， $R = \rho e^{-2i\theta_s}$ 中的相位因子 θ_s 代表受應力作用的方向，而 ρ 為應變耦合強度。解(2.20)式的本徵值和本徵函數，

可得兩個雙重簡併態，其能量為 $(\Delta_{lh} - \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2})/2$ 和 $(\Delta_{lh} + \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2})/2$ ，前者屬於類重電洞態 (Heavy-hole like states)，而後者屬於類輕電洞態 (Light-hole like states)。另外，類重電洞本徵態為

$$|\psi_h^\pm\rangle = \chi_{hh} \left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle - \frac{2\rho e^{\pm 2i\theta_s}}{\Delta_{lh} + \sqrt{\Delta_{lh}^2 + \rho^2}} \chi_{lh} \left| \mp \frac{1}{2} \right\rangle, \quad (2.21)$$

由(2.21)式可知，在價電帶混合效應的作用下，會造成重電洞態和輕電洞態的混合。在弱價電帶混合效應近似下，耦合強度會遠小於重電洞和輕電洞間的能階差，即 $\rho \ll \Delta_{lh}$ ，此時類重電洞態能量為 $(\Delta_{lh} - \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2})/2 \approx 0$ ，而類輕電洞態能量為 $(\Delta_{lh} + \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2})/2 \approx \Delta_{lh}$ ，且(3.22)式的類重電洞本徵態可以簡化為

$$|\psi_h^\pm\rangle = \chi_{hh} \left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle - \frac{\rho e^{\pm 2i\theta_s}}{\Delta_{lh}} \chi_{lh} \left| \mp \frac{1}{2} \right\rangle. \quad (2.22)$$

接著結合電子-電洞短程交換作用力、長程交換作用力以及 H_{BP} ，當選擇 $|\downarrow; +3/2\rangle$ 、 $|\uparrow; -3/2\rangle$ 、 $|\uparrow; +1/2\rangle$ 和 $|\downarrow; -1/2\rangle$ 為基底，可得明激子的漢米爾頓方程式為

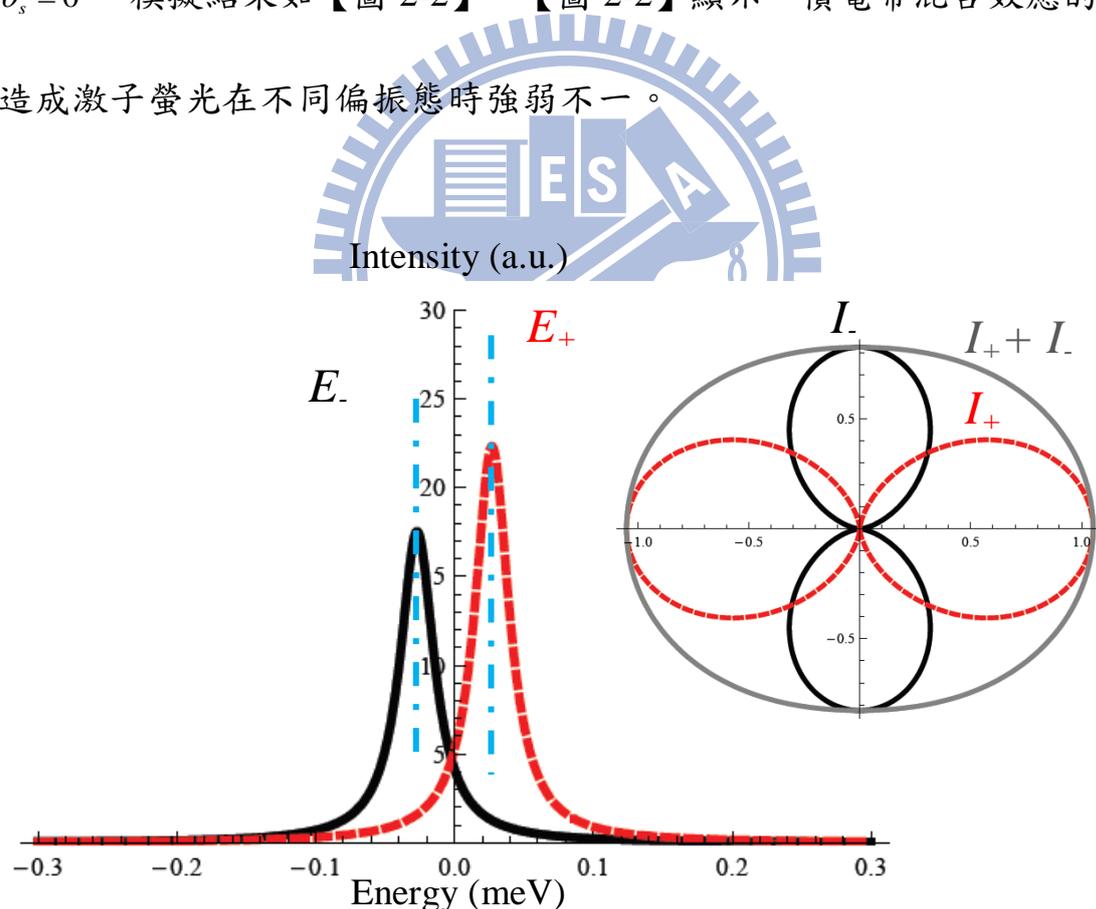
$$H_{ex} = \begin{pmatrix} \frac{\delta_0 + \Delta_0}{2} & \frac{\Delta_1}{2} & -\frac{\delta_0}{\sqrt{3}} \frac{I_{lh}}{I_{hh}} & \rho e^{-2i\theta_s} \\ \frac{\Delta_1}{2} & \frac{\delta_0 + \Delta_0}{2} & \rho e^{+2i\theta_s} & -\frac{\delta_0}{\sqrt{3}} \frac{I_{lh}}{I_{hh}} \\ -\frac{\delta_0}{\sqrt{3}} \frac{I_{lh}}{I_{hh}} & \rho e^{-2i\theta_s} & \Delta_{lh} - \left(\frac{\delta_0}{6} \frac{I_{lh}}{I_{hh}} + \frac{\Delta_0}{2} \right) & \frac{\Delta'_1}{2} \\ \rho e^{+2i\theta_s} & -\frac{\delta_0}{\sqrt{3}} \frac{I_{lh}}{I_{hh}} & \frac{\Delta'_1}{2} & \Delta_{lh} - \left(\frac{\delta_0}{6} \frac{I_{lh}}{I_{hh}} + \frac{\Delta_0}{2} \right) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\frac{1}{2}; +\frac{3}{2} \\ +\frac{1}{2}; -\frac{3}{2} \\ +\frac{1}{2}; +\frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

若分析(2.23)式 H_{ex} 的本徵值，可得到激子能態的能量；而利用 H_{ex} 的本徵函數可以得到激子復合發光的躍遷率，進而求得螢光強度，如同 2.2 小節中的 (2.16) 式。若假設

$$\Delta_0 = 0, \delta_0 = 0.1 \text{ meV}, \Delta_1 = 0.08 \text{ meV}, \Delta'_1 = \Delta_1 / 3, \Delta_{hh} = 80 \text{ meV},$$

$$\rho = 22.5 \text{ meV}, \frac{I_{lh}}{I_{hh}} = 0.4$$

以及量子點伸長方向和受應力方向分別沿垂直和水平，也就是， $\theta_d = 90^\circ$ 、 $\theta_s = 0^\circ$ 。模擬結果如【圖 2-2】。【圖 2-2】顯示，價電帶混合效應的存在，造成激子螢光在不同偏振態時強弱不一。



【圖2-2】 在價電帶混合效應的影響下，量子點激子的光激螢光模擬光譜；右上角插圖為激子螢光強度偏振圖。

2.4 賽曼效應 (Zeeman effect)

量子點透過電子自旋與電洞自旋，與外加磁場產生交互作用，若外加磁場 \vec{B} 為任意方向、任意大小，即 $\vec{B} = B_x \hat{x} + B_y \hat{y} + B_z \hat{z}$ ，其漢米爾頓方程式可寫成[13][14][15]

$$H_B = \mu_B g_e \hat{S}_e \cdot \vec{B} + 2\mu_B (\kappa \vec{J}_h \cdot \vec{B} + q \vec{J}_h^3 \cdot \vec{B}), \quad (2.24)$$

其中， μ_B 為波耳磁元 (Bohr magneton)， κ 和 q 為 Luttinger 參數， g_e 為電子的 g 因子 (g factor)。磁場透過賽曼效應作用於電子的形式為

$$H_B^e = \mu_B g_e \hat{S}_e \cdot \vec{B}, \quad (2.25)$$

當外加平行於樣品表面的水平 (Transverse) 磁場， $\vec{B} = B \cos \varphi \hat{x} + B \sin \varphi \hat{y}$ ，則(2.25)式可以寫為

$$H_{B,xy}^e = \frac{1}{2} \mu_B g_e B \begin{pmatrix} 0 & e^{-i\varphi} \\ e^{i\varphi} & 0 \end{pmatrix}, \quad (2.26)$$

當外加水平磁場，此時系統為沃伊特配置 (Voigt configuration)，在此系統中，磁場會透過賽曼效應造成電子態 $|+\frac{1}{2}\rangle$ 和 $|-\frac{1}{2}\rangle$ 耦合，使其本徵態變為

$$|\psi^\pm\rangle = \frac{|+\frac{1}{2}\rangle \pm e^{i\varphi} |-\frac{1}{2}\rangle}{\sqrt{2}}, \quad (2.27)$$

但耦合之後之本徵能量 E_\pm 不變，其值仍為 $\pm \frac{1}{2} \mu_B g_e B$ 。

另外，磁場作用於電洞的形式為[13][14][15]

$$H_B^h = 2\mu_B (\kappa \vec{J}_h \cdot \vec{B} + q \vec{J}_h^3 \cdot \vec{B}), \quad (2.28)$$

其中 $\vec{J}_h^3 \equiv J_{h,x}^3 \hat{x} + J_{h,y}^3 \hat{y} + J_{h,z}^3 \hat{z}$ ，而 $J_{h,x}^3$ 、 $J_{h,y}^3$ 、 $J_{h,z}^3$ 分別是

$$J_{h,z}^3 = \frac{1}{8} \begin{pmatrix} 0 & 7\sqrt{3} & 0 & 6 \\ 7\sqrt{3} & 0 & 20 & 0 \\ 0 & 20 & 0 & 7\sqrt{3} \\ 6 & 0 & 7\sqrt{3} & 0 \end{pmatrix}, J_{h,y}^3 = \frac{1}{8} \begin{pmatrix} 0 & -i7\sqrt{3} & 0 & 6i \\ i7\sqrt{3} & 0 & -20i & 0 \\ 0 & 20i & 0 & -i7\sqrt{3} \\ -6i & 0 & i7\sqrt{3} & 0 \end{pmatrix}, J_{h,z}^3 = \frac{1}{8} \begin{pmatrix} 27 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -27 \end{pmatrix}, \quad (2.29)$$

因此，在水平磁場中，(2.28)式可寫為

$$H_{B,xy}^h = \frac{1}{2} \mu_B B \begin{pmatrix} 0 & g_{h1} e^{-i\varphi} & 0 & g_{h3} e^{i\varphi} \\ g_{h1} e^{i\varphi} & 0 & g_{h2} e^{-i\varphi} & 0 \\ 0 & g_{h2} e^{i\varphi} & 0 & g_{h1} e^{-i\varphi} \\ g_{h3} e^{-i\varphi} & 0 & g_{h1} e^{i\varphi} & 0 \end{pmatrix} \begin{matrix} |+\frac{3}{2}\rangle \\ |+\frac{1}{2}\rangle \\ |-\frac{1}{2}\rangle \\ |-\frac{3}{2}\rangle \end{matrix}, \quad (2.30)$$

其中 $g_{h1} = \sqrt{3}(2\kappa + \frac{7}{2}q)$ 、 $g_{h2} = 4\kappa + 10q$ 以及 $g_{h3} = 3q$ 。為簡化問題，在此假設磁場平行於 x 方向或 y 方向，即 $\varphi = 0^\circ$ or 90° 。若以重電洞激子能態為基底，當 $\varphi = 0^\circ$ 或 $\varphi = 90^\circ$ ，漢米爾頓方程式分別為

$$H_{B,x}^X = \frac{1}{2} \mu_B B_x \begin{pmatrix} 0 & 0 & g_{e,x} & g_{h,x} \\ 0 & 0 & g_{h,x} & g_{e,x} \\ g_{e,x} & g_{h,x} & 0 & 0 \\ g_{h,x} & g_{e,x} & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{matrix} (-\frac{1}{2}, +\frac{3}{2}) \\ (+\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}) \\ (+\frac{1}{2}, +\frac{3}{2}) \\ (-\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}) \end{matrix}, \quad (2.31)$$

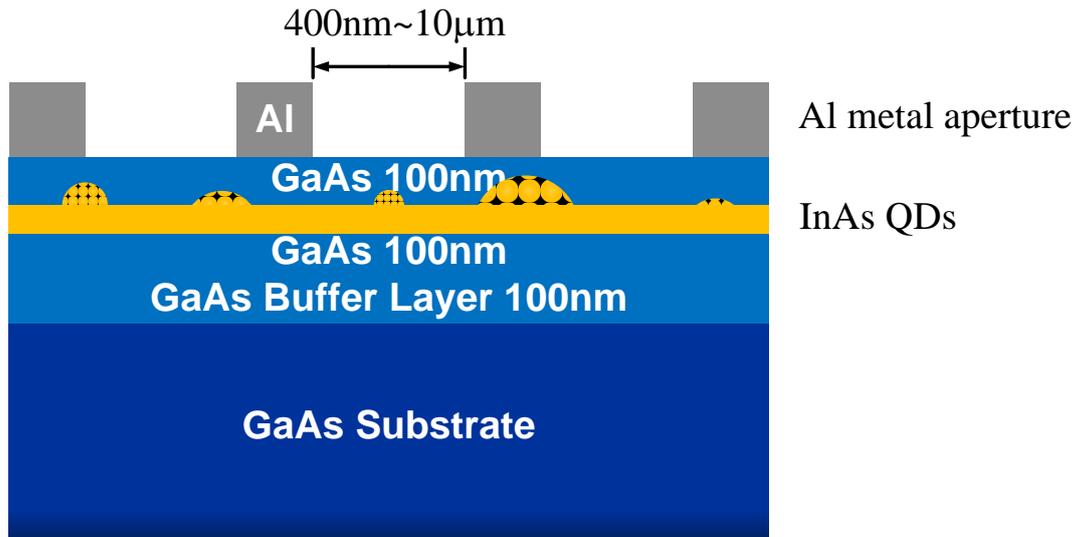
$$H_{B,y}^X = i \frac{1}{2} \mu_B B_y \begin{pmatrix} 0 & 0 & g_{e,x} & -g_{h,y} \\ 0 & 0 & g_{h,y} & -g_{e,x} \\ -g_{e,x} & g_{h,y} & 0 & 0 \\ -g_{h,y} & g_{e,x} & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{matrix} (-\frac{1}{2}, +\frac{3}{2}) \\ (+\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}) \\ (+\frac{1}{2}, +\frac{3}{2}) \\ (-\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}) \end{matrix}. \quad (2.32)$$

第三章 樣品與實驗裝置

3.1 樣品結構

本論文所使用的樣品為砷化銦 (InAs) 單量子點，是由交通大學電子工程系林聖迪教授所提供。本樣品採用分子束磊晶法 (MBE) 成長，其結構如【圖 3-1】所示。在樣品的成長過程中，首先，在砷化鎵 (GaAs) 基板 (100) 方向上先成長約 100 nm 的緩衝層，如此可使磊晶的表面層平坦並且減少基板表面的缺陷。接著，在緩衝層之上再成長 100 nm 的砷化鎵，隨後便利用 Stranski-Krastanow 成長法成長一層砷化銦量子點。最後在量子點上，覆蓋一層 100 nm 的砷化鎵覆蓋層。

另外，為提高測量到單量子點的機率，樣品的表層製作了不同大小的金屬微奈米孔穴，其孔徑大小介於 400 nm 至 10 μm 間。而微奈米孔穴是將鋁金屬蒸鍍至樣品表面使形成厚度約 100 nm 的不透光層，再利用電子束微影技術製作而成。



【圖3-1】 砷化銦單量子點樣品結構圖

3.2 顯微光激螢光 (Micro Photoluminescence) 量測系統

本論文中所使用的光譜量測技術為顯微光激螢光實驗，其實驗裝置如【圖 3-2】所示。顯微光激螢光實驗是由光譜量測系統及監控系統兩部份構成。在光譜量測系統中，使用氬氙雷射 (波長 632.8 nm) 做為激發光源，藉由反射鏡及 50 倍物鏡，將雷射聚焦至樣品表面，激發奈米孔穴中的砷化銦單量子點，使樣品中位於價電帶的電子吸收光子而躍遷至傳導帶，並留下一個電洞在價電帶。這些高能量的電子會經由晶格碰撞釋出能量而掉到傳導帶底部；同樣的，高能量的電洞亦會因為晶格碰撞釋出能量而掉到價電帶頂部。隨之，這些在傳導帶底部的電子和價電帶頂部的電洞會進行復合而發光，即所謂的光激螢光，而且所放出的光子能量大約與半導體材料的能隙 (Band gap) 相等。

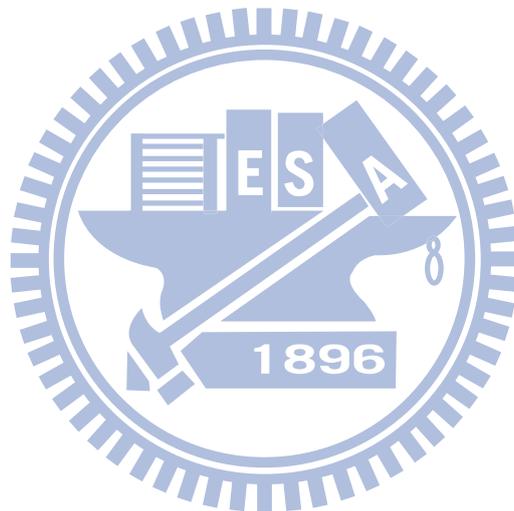
當單量子點被激發而放出螢光，利用反射鏡將螢光引入光譜儀進行分光，而後利用電荷耦合元件 (CCD) 偵測各個波長下的螢光強度，最後將訊號輸入電腦繪出光激螢光光譜。藉由光激螢光光譜，便能在不破壞樣品的情況下，分析半導體材料的能帶結構。

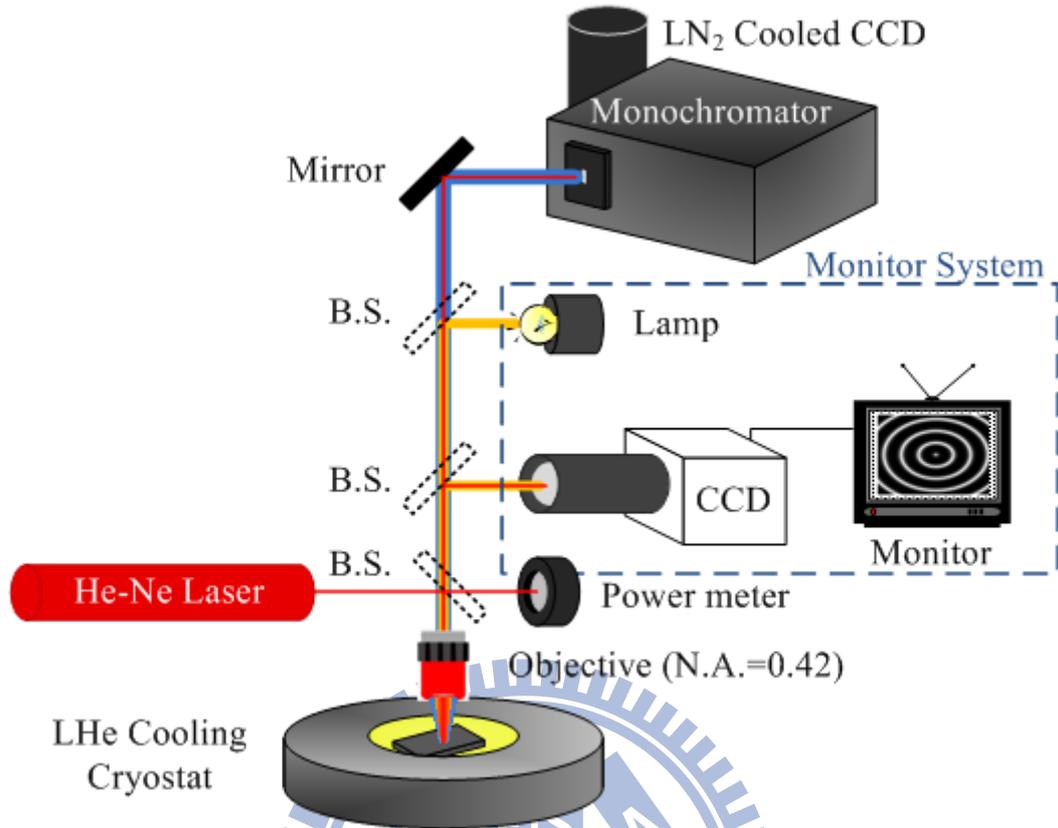
此外，顯微光激螢光實驗也包含監控系統，如【圖 3-2】中虛線部份。由於此實驗通常是針對尺寸非常小的結構進行量測，例如本實驗中，為了量測直徑僅數百奈米的奈米孔穴，因此需要隨時監看激發在樣品上的激發位置，否則將很難將雷射聚焦至尺度極小的奈米孔穴中。監控系統由白光 (Lamp)、CCD 和螢幕所組成。透過分光鏡 (Beam splitter, B.S.) 使白光一樣經由物鏡聚焦後打在樣品上，樣品反射白光後同樣利用分光鏡使其射入 CCD 成像，因此藉由螢幕觀察樣品表面影像和雷射聚焦位置，便能一邊觀察螢幕一邊調整樣品底下的移動平台、改變雷射聚焦位置。這裡所使用的分光鏡也是可動式，因此光譜量測系統和監控系統兩者可以獨立作業而不會相互影響。

為了進一步分析光激螢光的偏振性，在樣品螢光訊號進入光譜儀前的光路上架設了二分之一波片及偏振晶體，藉由改變波片光軸和偏振晶體光軸間的夾角，即可選擇特定方向的偏振光進入光譜儀而進行分析。

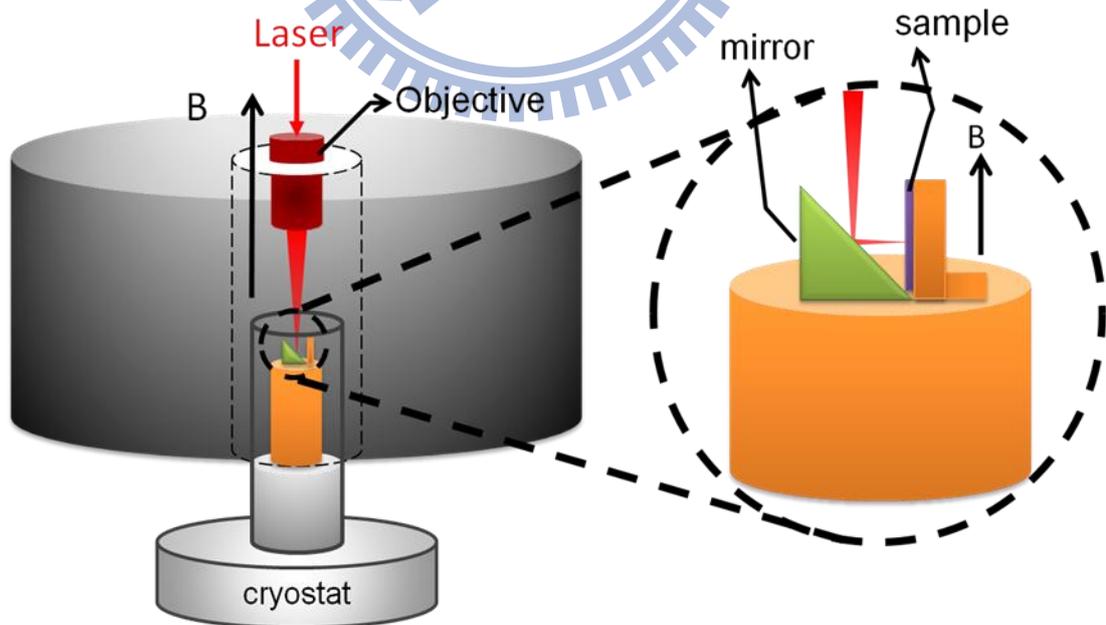
若結合顯微光激螢光系統與磁場系統，便可觀察樣品在磁場中的發光

行為。在本論文中所外加的磁場方向與樣品表面呈水平，如【圖 3-3】所示。首先將樣品固定於 L 型基座上，使得樣品表面與外加磁場方向相互平行，再利用一反射面與雷射入射方向夾 45 度角的反射鏡改變雷射方向。如此，便可得到砷化銻量子點在水平磁場中的光激螢光光譜。





【圖3-2】 顯微光激螢光量測系統實驗裝置



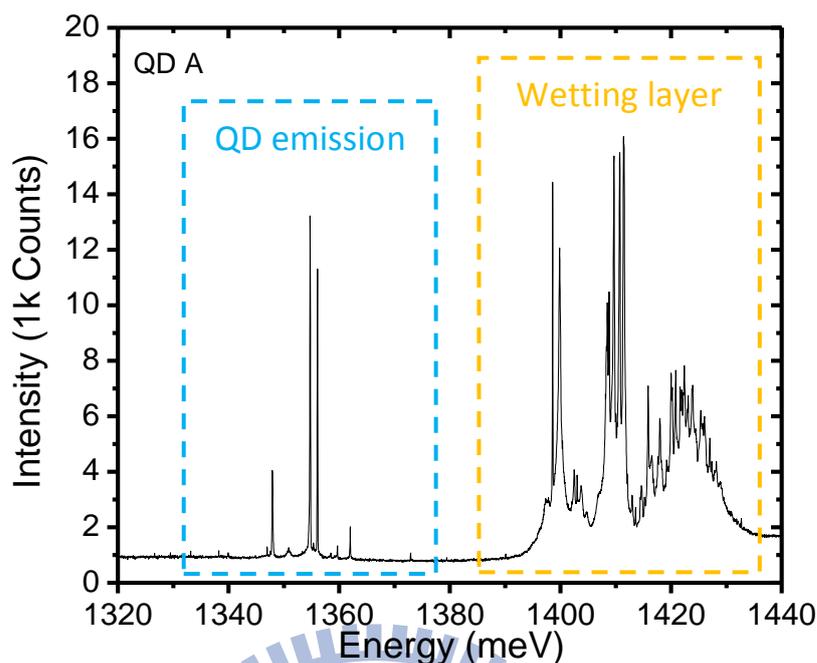
【圖3-3】 樣品於水平磁場中之示意圖

第四章 光譜分析與討論

4.1 單量子點顯微光激螢光光譜

實驗測量到的量子點顯微光激螢光光譜如【圖 4-1】，從圖中可以觀察到樣品的螢光訊號分為兩部分；第一部份出現在高能量，大約從 1390 meV 分布到 1440 meV，有許多群聚出現的譜線，此為濕潤層 (wetting layer) 訊號；另外，在能量低於濕潤層訊號、約 1340 meV 到 1370 meV 之間，也有一些極細的譜線，其半高寬大多小於 100 μeV ，而且這些極細譜線的強度對雷射聚焦的位置非常敏感，因此判斷這些極細譜線為量子點的螢光訊號。

為了得到單量子點顯微光激螢光光譜，首先針對各個不同直徑的奈米孔穴量測螢光譜線，再藉由光譜分析，判斷哪些孔穴僅含有單量子點。一般而言，當使用低功率雷射激發量子點，光譜中的量子點螢光訊號若僅存在單一譜線，可藉此推測該奈米孔穴中只包含單量子點。

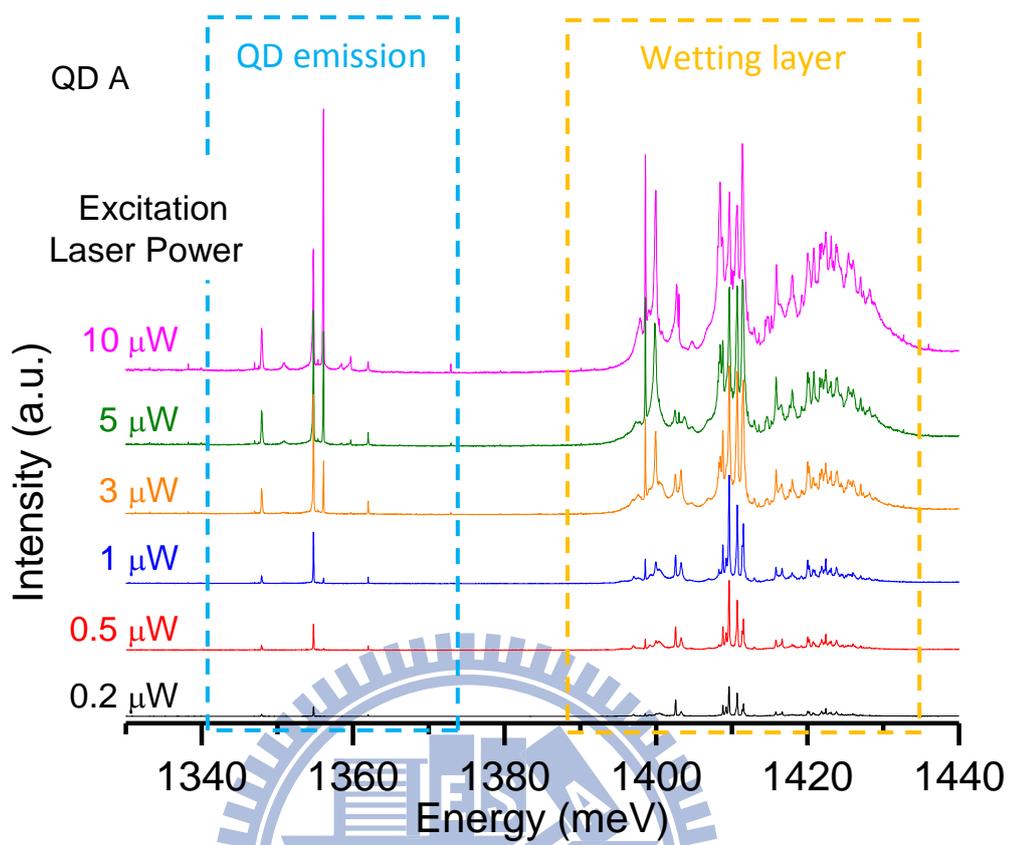


【圖4-1】 量測奈米孔穴 A 得到的顯微螢光光譜

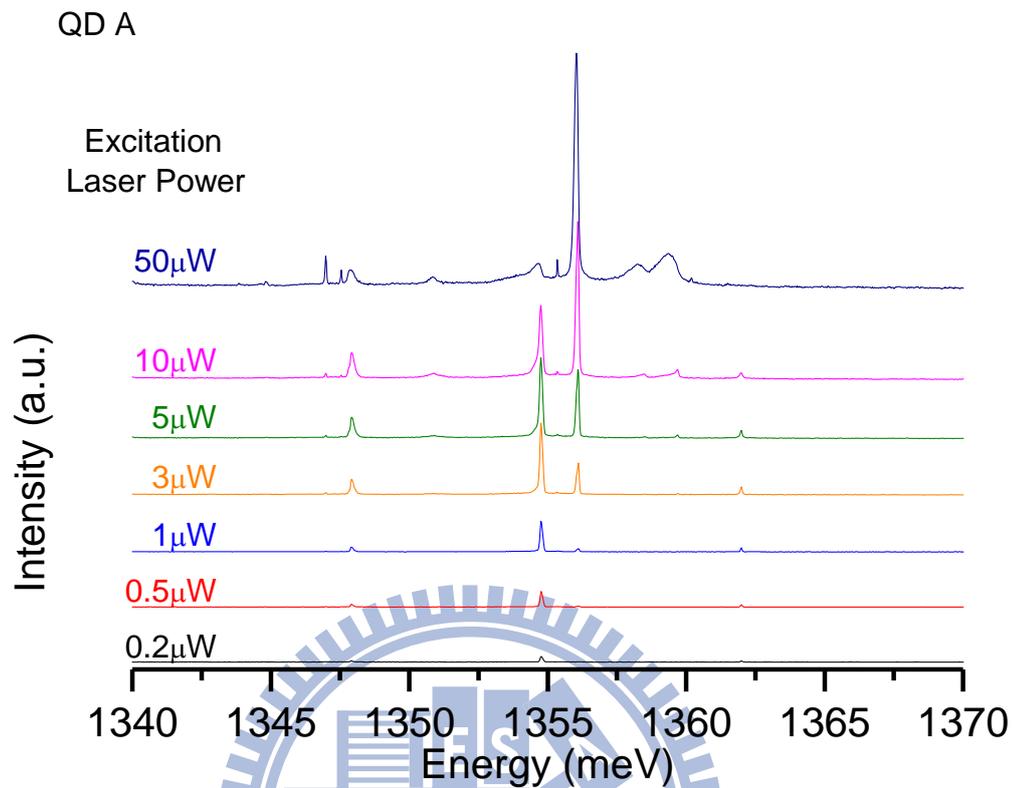
接著，改變不同的雷射功率激發量子點，實驗結果如【圖 4-2】。由圖中可以觀察到，當激發雷射功率較低時，例如 $0.2 \mu\text{W}$ (6 W/cm^2)，此時量子點螢光訊號僅在能量約 1355 meV 處明顯存在單一譜線。因此可以推測此訊號是來自於單量子點中的電子電洞對復合發光。隨著雷射激發功率的提高，位於高能量側的濕潤層訊號以及較低能量的量子點螢光訊號都有越來越多譜線隨之出現。

雷射激發功率的提高，使樣品中單位時間內產生的電子電洞對增加，因此提高了量子點捕捉到電子電洞對的機率。電子電洞對在量子點中會因為庫倫作用而形成激子。在低功率激發時，量子點不易捕捉到電子或電洞，

在其他電荷填入量子點前激子便已進行復合而發光，因此只能觀察到單一譜線。在高功率雷射激發下，電子或電洞在激子復合前填入量子點的機率大為提升，此時激子受到後來填入的電子或電洞庫倫作用力影響而發出不同能量的螢光訊號，如【圖 4-2】中，當雷射激發功率提高至 $3 \mu\text{W}$ (90 W/cm^2)，可以清楚觀察到總共出現了四條譜線。由於包立不相容原理，量子點之電子及電洞基態最多只能填入不同自旋的兩個電子及兩個電洞，因此可歸納出四種激子復合物 (Exciton complex)，分別是電中性的單激子 (以下簡稱為激子)、雙激子 (XX, Biexciton)，以及帶正電的正激子 (X^+ , Positively charged exciton) 和帶負電的負激子 (X^- , Negatively charged exciton)。在【圖 4-2】以較高功率雷射激發之光譜中，一共觀察到量子點螢光訊號中出現了四條譜線，此即四種激子復合物的電子電洞對復合發光。在雷射激發功率增加的過程中，這四條譜線的螢光強度也隨之增強；最後，在高功率雷射激發下，量子點中同時存在兩對電子電洞的機率非常高，此時的譜線中會以雙激子螢光的強度最強，如【圖 4-3】中，能量 1356 meV 的量子點螢光訊號。

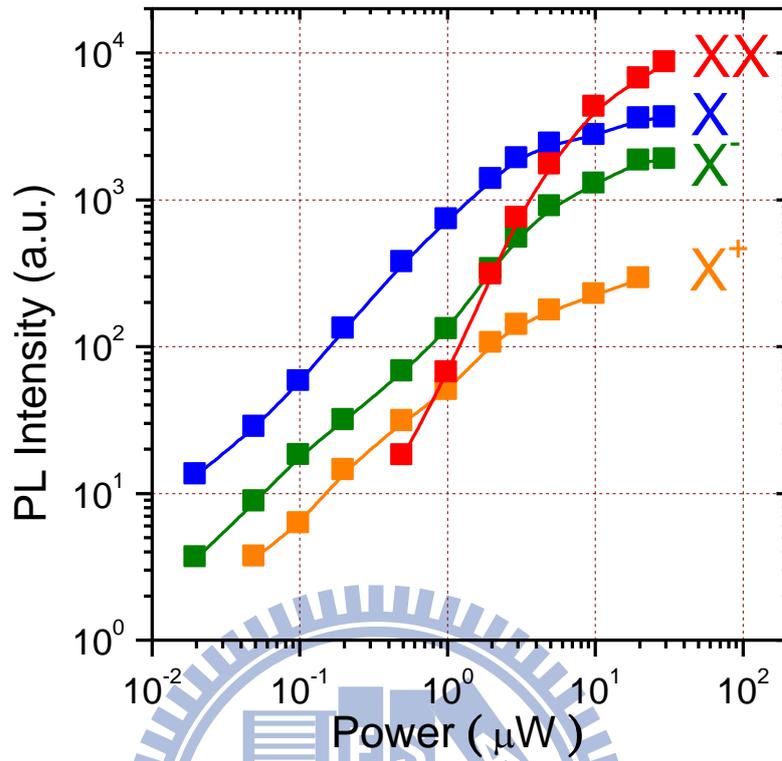


【圖4-2】 不同雷射激發功率下，量測奈米孔穴 A 得到的顯微螢光光譜



【圖4-3】 不同雷射激發功率下，在奈米孔穴 A 中，量子點的顯微螢光光譜

由於這些激子複合物的螢光強度跟雷射激發功率的大小關係密切，因此將螢光強度及雷射激發功率分別取對數作圖，分析螢光強度對雷射激發功率的關係，結果如【圖 4-4】。由圖中觀察到除了雙激子的螢光強度與雷射激發功率呈平方關係，其餘三條譜線的斜率都接近 1，也就是這三種激子複合物的螢光強度皆會隨雷射激發功率的提高而線性增加，由此可知此三條譜線分別為激子、正激子和負激子，而他們的帶電性則需要進一步的實驗加以探討。

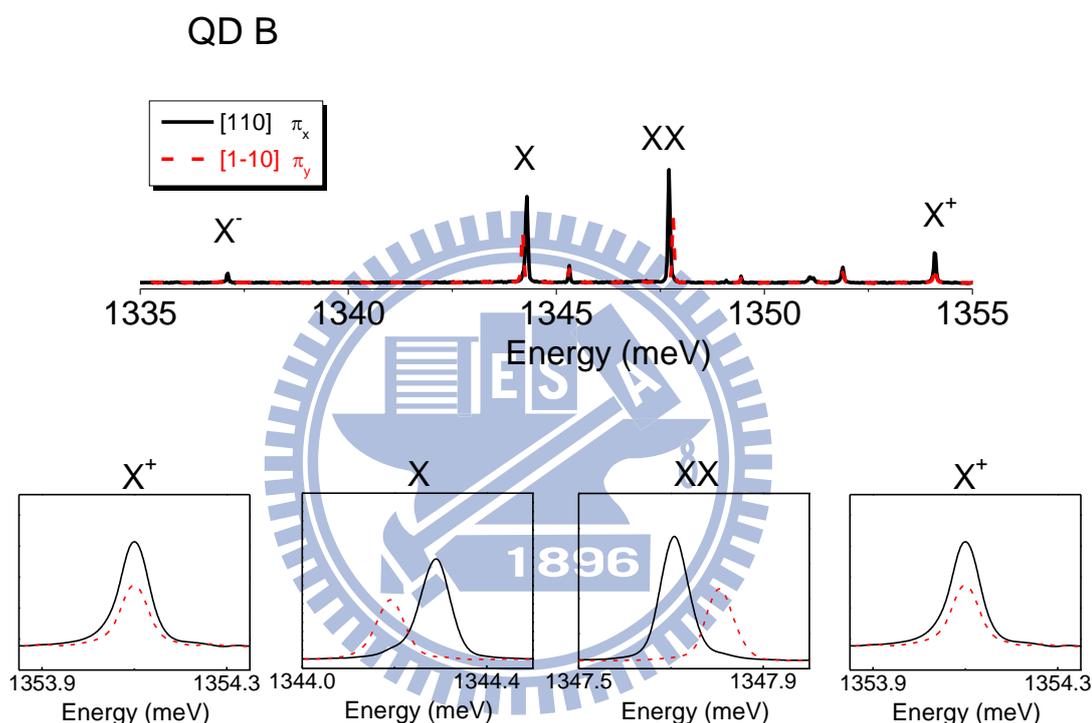


【圖4-4】 單量子點激子複合物的雷射激發功率對螢光強度關係圖

4.2 單量子點偏振螢光光譜

4.2.1 精細結構分裂

為分析單量子點光激螢光的極化方向，我們使用二分之一波片和偏振晶體選擇螢光的偏振方向，測量到的光激螢光光譜如【圖 4-5】。



【圖4-5】 量子點 B 的水平(π_x)和垂直(π_y)線偏振光激螢光光譜

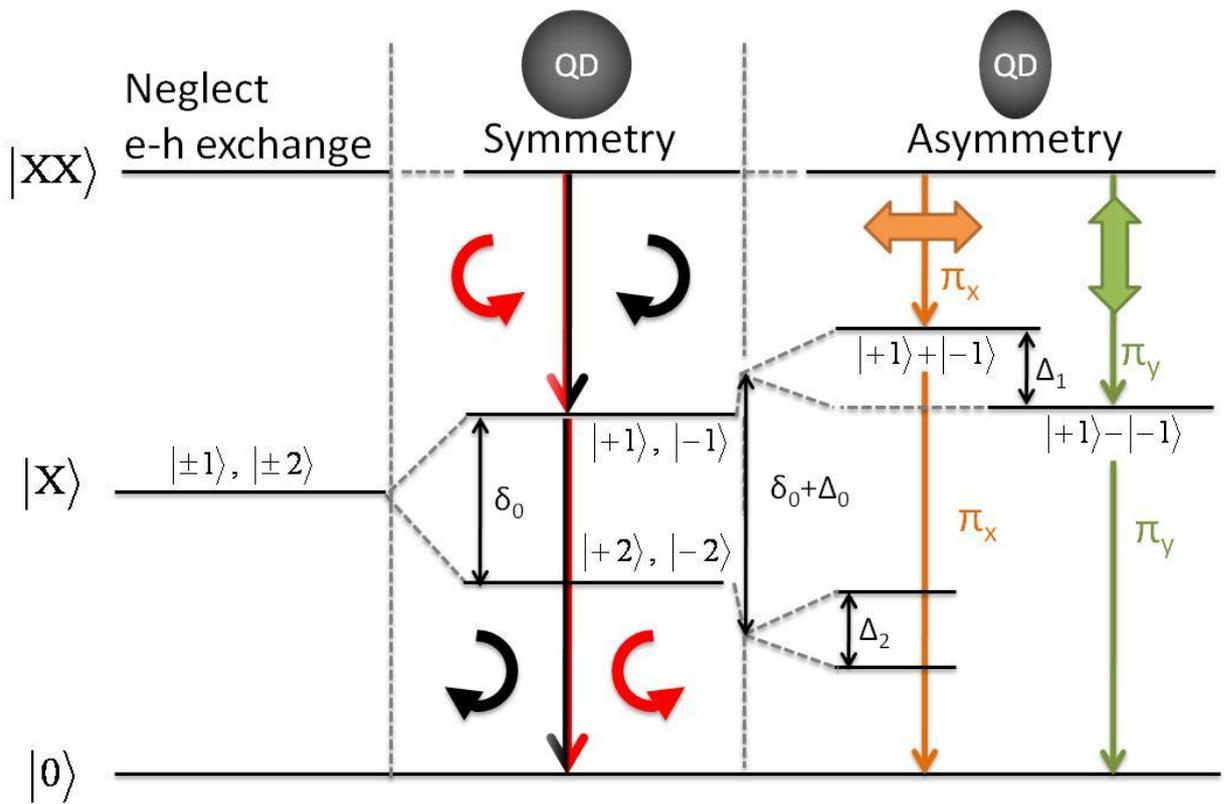
上圖為量測平行於樣品[110]方向和[1-10]方向得到的線偏振螢光訊號，分別定義為 π_x 和 π_y 。量子點訊號中僅激子和雙激子有精細結構分裂，且其偏振方向相反。通常，在激子螢光中， π_x 的能量高於 π_y 的能量；而雙激子則是 π_y 具有較高能量。此外，正激子和負激子則都不具有精細結構。此精

細結構分裂，可以由電子電洞交換作用加以解釋。

若不考慮電子-電洞交換作用，激子能態會由明激子 $|\pm 1\rangle$ 能態和暗激子 $|\pm 2\rangle$ 能態簡併而成，如【圖 4-6】所示；但實際上量子點中存在電子-電洞交換作用，且其中短程交換作用，會造成明激子和暗激子能階分裂 δ_0 ，如(2.11)式所示。而此時激子和雙激子的螢光極化方向，經過 2.1 節的推導可知仍為圓偏振。但由於量子點可能會因形狀不對稱 (Shape asymmetry)、應變 (Strain) 及壓電 (Piezoelectricity) 效應[17]的影響，使量子點在長軸和短軸方向的量子侷限效應的對稱性被破壞，電子和電洞形成偶極 (Dipole) 造成長程交換作用，使明激子能階分裂，如(2.15)式所示；此分裂即為精細結構，由(2.14)式可知激子的精細結構分裂 $\Delta_{FS} = E_+ - E_- = \Delta_1$ 。另外，此精細結構只會出現於中性激子，如激子和雙激子；對正激子和負激子等帶電激子而言，由於其電洞或電子總自旋為零，使(2.6)式中， $H_{ex} = 0$ ，因此不會出現精細結構；可由此區別中性激子和帶電激子。

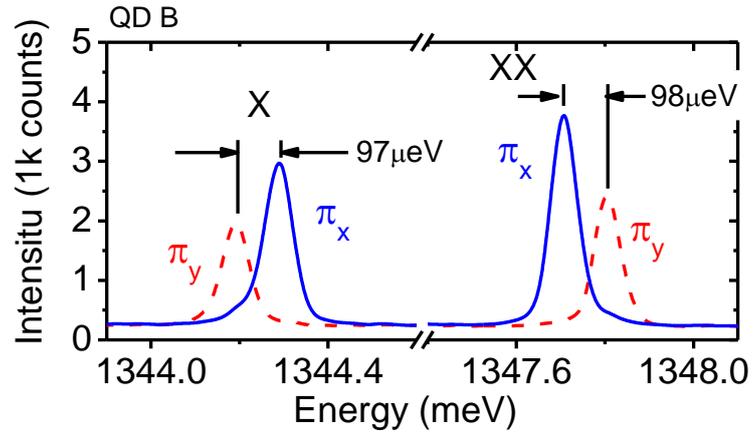
本實驗中所測量的量子點偏振螢光光譜，大致可分為三種類型，如【圖 4-7】所示。圖(a)為量子點 B 之譜線，其精細結構接近 0.1 meV；實驗中，精細結構分裂定義為 $\Delta_{FS} = E_x(\pi_x) - E_x(\pi_y)$ ，大部分量子點的精細結構分裂為正值，即激子螢光訊號中 π_x 的能量高於 π_y ，如同圖(a)中量子點 B 的結果。從圖(b)中量子點 C 的光譜可以看出激子訊號 π_y 的能量高於 π_x ，因此其精細

結構分裂為負值。第三種則是圖(c)量子點 D 的光譜，其激子螢光的精細結構分裂也是負值，不同的是其激子螢光能量高於雙激子螢光能量。量子點激子螢光的精細結構分裂與激子能量的關係如【圖 4-8】，由圖中可知，隨著激子螢光能量升高，精細結構分裂會變小，且其範圍介在 $-40 \mu\text{eV}$ 到 $100 \mu\text{eV}$ 間。

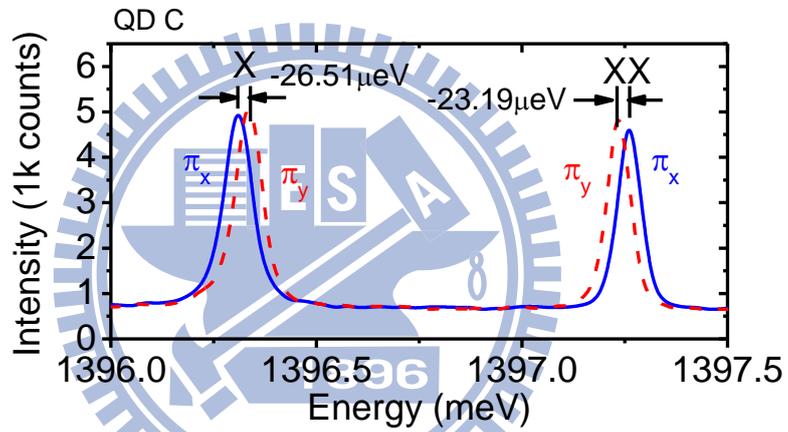


【圖4-6】 在不同電子-電洞交換能及量子點對稱性的情況下，單量子點中，激子和雙激子的能階示意圖。

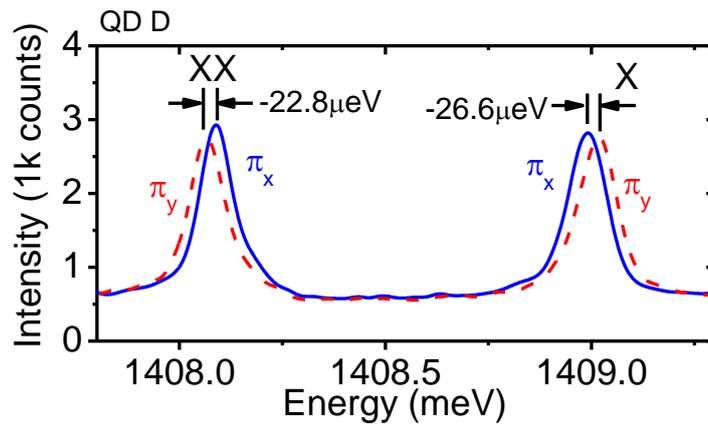
(a)



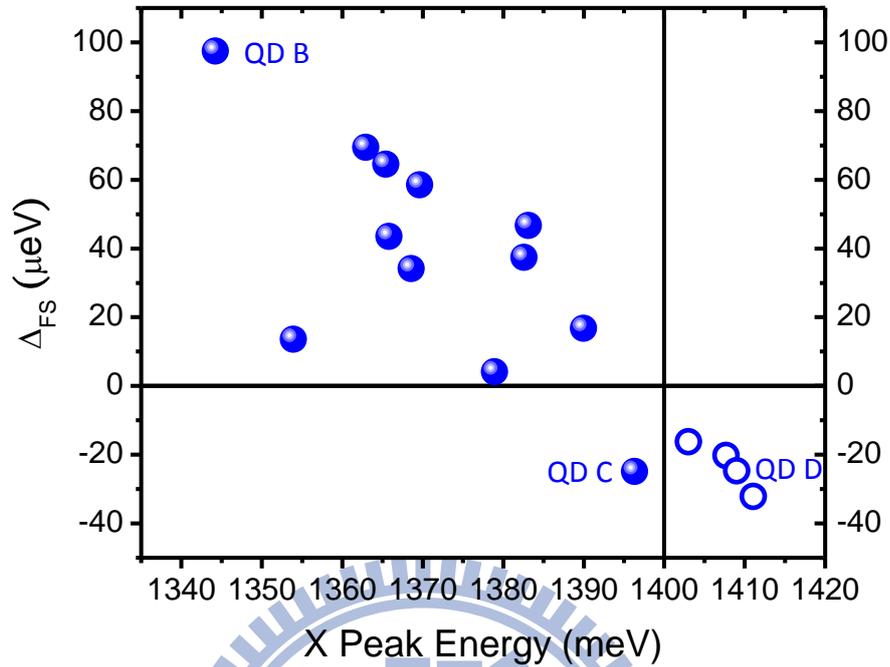
(b)



(c)



【圖4-7】不同量子點的偏振螢光光譜；圖(a)、圖(b)和圖(c)分別為量子點 B、量子點 C 和量子點 D 的光譜。



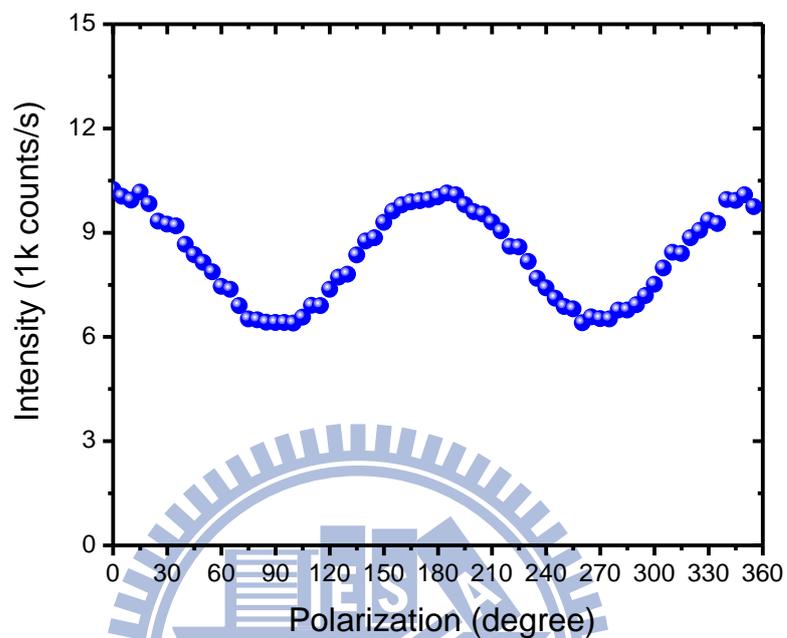
【圖4-8】 量子點的激子能量對精細結構分裂關係圖。

4.2.2 偏振不對稱性 (Polarization anisotropy)

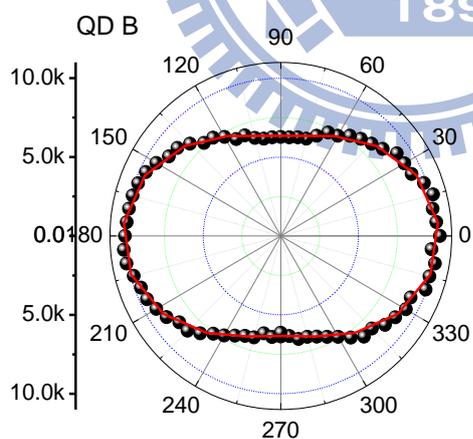
比較 4.2.1 節中，實驗量測得到單量子點偏振螢光光譜，以及 2.2 節中經由計算模擬得到的激子偏振螢光光譜，可以發現前者的譜線中， π_x 和 π_y 的螢光強度通常不相同，如【圖 4-9 (a)】，激子訊號中 π_x 螢光強度明顯較 π_y 螢光強度強；然而【圖 2-1】顯示，根據計算模擬的結果，這兩個極化方向的螢光強度應該要相等。因此，為了進一步分析螢光強度與偏振方向的關係，我們量測單量子點在各個偏振方向下的偏振螢光光譜，以觀察激子螢光在不同偏振方向時的強度變化，得到量子點 B 激子的偏振螢光光譜如【圖

4-9】。

(a)

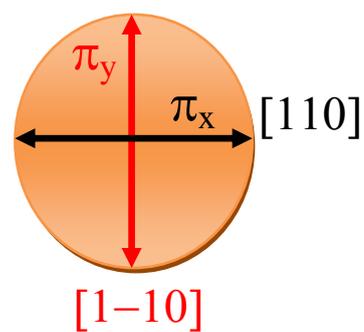


(b)



Polarization anisotropy =26%

(c)



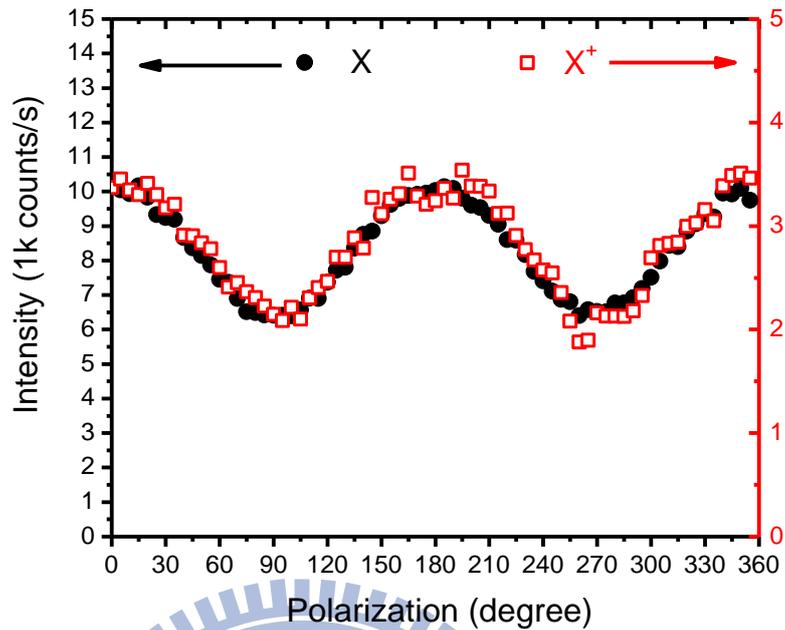
【圖4-9】 在量子點 B 中，偏振角對激子螢光強度關係圖(a)和極化圖 (b)。以及量子點偏振方向示意圖(c)。

【圖 4-9 (a)】顯示，激子螢光強度會隨著偏振方向的改變而呈現週期性的變化，再藉由【圖 4-9 (b)】可以明顯看出激子螢光在水平偏振方向 (0° - 180°) 的強度較強；若與【圖 4-9 (c)】對照，可發現在量子點 B 中，極化方向平行於量子點短軸的激子螢光強度較強。像這樣，激子螢光譜線中不同極化方向的線偏振光其強度有所差異，稱為偏振不對稱性 (Polarization anisotropy)，或是線偏振程度 (Degree of linear polarization)，不對稱的程度以 P_L 值決定[13]， P_L 定義為

$$P_L = \frac{I(\pi_x) - I(\pi_y)}{I(\pi_x) + I(\pi_y)} \quad (4.1)$$

利用(3.17)式，可得量子點 B 激子螢光的偏振不對稱性 $P_L = 26\%$ 。

除了原本就有精細結構的中性激子，我們量測量子點 B 的正激子發現，沒有精細結構的帶電激子也存在偏振不對稱性。如【圖 3-11】所示，在量子點 B 中，激子和正激子具有相同的偏振不對稱性。因此我們推測，偏振不對稱性可能來自於應變對量子點的影響，造成價電帶混合，因此同一個單量子點產生的光激螢光，偏振不對稱性皆相同。



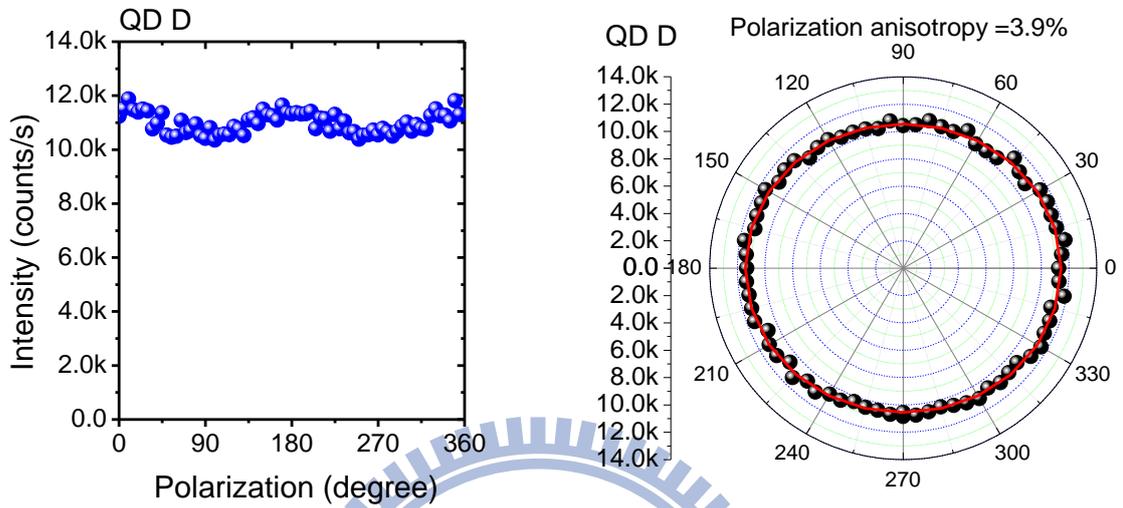
【圖4-10】 在量子點 B 中，改變不同偏振角時，激子與正激子的螢光強度變化圖。

但實驗結果也顯示，不同量子點之間，激子螢光的偏振不對稱性都不甚相同。有些量子點的激子螢光強度幾乎不隨偏振角改變，偏振不對稱性很小。如【圖 4-11 (a)】的量子點 D，其激子螢光的偏振不對稱性 $P_L=3.9\%$ ；另外，由【圖 4-11 (b)】可觀察到，量子點 C 的激子螢光以 π_y 的強度較強，此結果與大部分量子點相反，因此其偏振不對稱性為負值， $P_L=-1.4\%$ 。

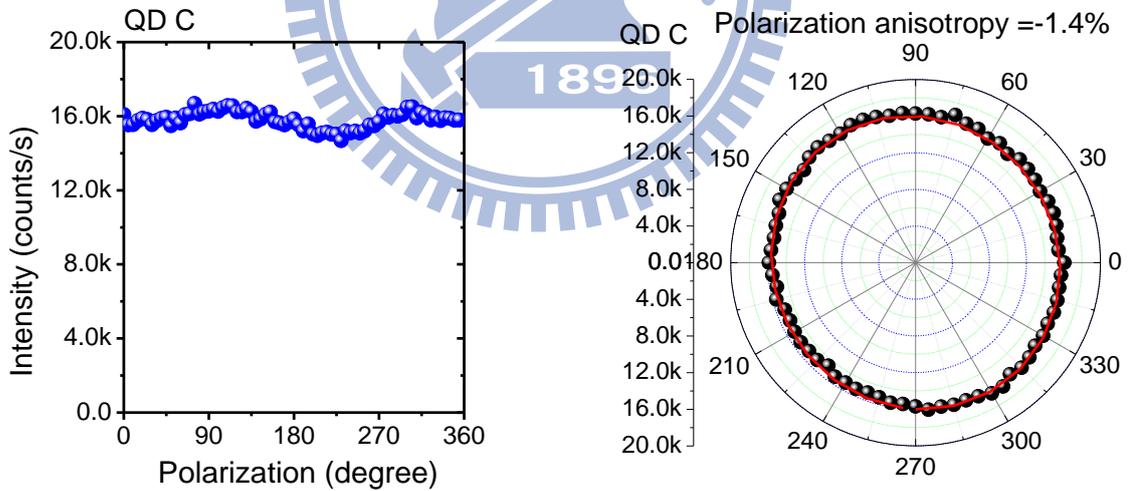
統計本實驗中單量子點的激子螢光偏振不對稱性，可得【圖 4-12】。觀察【圖 4-12】可以發現隨著單量子點激子能量的升高，其偏振不對稱性有變小的趨勢，而且可能變為負值。在本實驗中，量測到偏振不對稱性的

範圍介於 -2 % 到 26 % 之間。

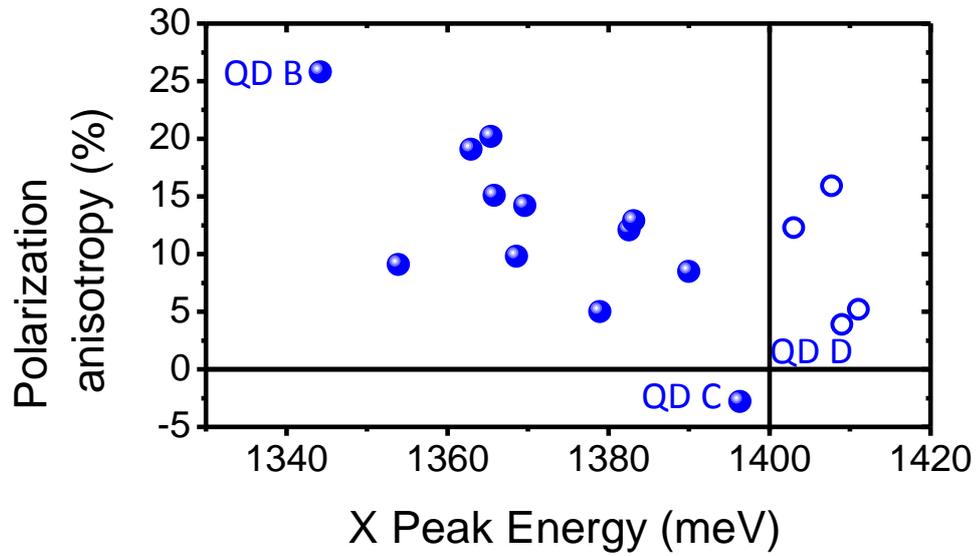
(a)



(b)

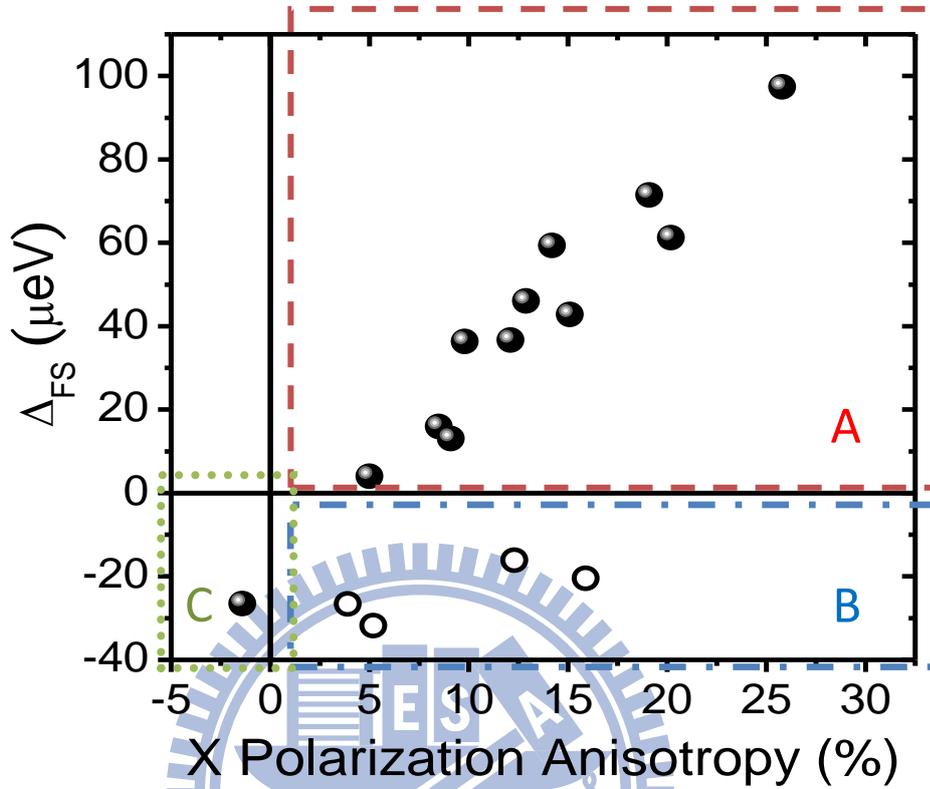


【圖4-11】 (a) 在量子點 D 中，偏振角對激子螢光強度關係圖和極化圖。以及(b) 量子點 C 中，偏振角對激子螢光強度關係圖和極化圖。



【圖4-12】 量子點的激子能量對偏振不對稱性關係圖。

偏振不對稱性的存在，由 2.3 節的推導已知是由價電帶混合效應所引起。此外，由【圖 2-2】觀察可知，激子的精細結構分裂小於 Δ_1 的 0.08meV ，此結果顯示精細結構分裂已不單純由 Δ_1 決定。價電帶混合效應不但造成激子的偏振不對稱性，同時也影響激子的精細結構分裂。【圖 4-13】為量子點的激子精細結構分裂對偏振不對稱關係圖。【圖 4-13】顯示單量子點激子螢光的精細結構分裂，隨著螢光偏振不對稱性的增加，也有增大的趨勢。



【圖4-13】 單量子點激子螢光之偏振不對稱性對精細結構分裂關係圖

利用(2.23)式中 H_{ex} 的解析解，可以做更進一步的分析。在弱價電帶混合效應近似下，透過一階微擾理論[11]，可將(2.23)式中的 $4 \times 4 H_{ex}$ 矩陣簡化為 $2 \times 2 H'_{ex}$ 矩陣。一階微擾理論的形式為

$$H'_{mn} = H_{mn} + \sum_{\alpha \in lh} \frac{H_{m\alpha} H_{\alpha n}}{E_{hh} - H_{\alpha\alpha}} \quad (4.2)$$

若選擇明激子態 $|\mp \frac{1}{2}; \psi_h^\pm\rangle$ 為基底，則可將(2.23)式中的 H_{ex} 簡化為

$$H_{ex} \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0 + \Delta_0 & \tilde{\Delta}_1 + 4\delta_0 \tilde{\gamma} \\ \tilde{\Delta}_1^* + 4\delta_0 \tilde{\gamma}^* & \delta_0 + \Delta_0 \end{pmatrix} \begin{matrix} |\downarrow; \psi_h^+\rangle \\ |\uparrow; \psi_h^-\rangle \end{matrix} \quad (4.3)$$

其中

$$\tilde{\gamma} \equiv \frac{\rho e^{-2i\theta} I_{lh}}{\sqrt{3}\Delta_{lh} I_{hh}} = \gamma^{-2i\theta_s} \quad (4.4)$$

由(4.3)式可知，應變引起了價電帶混合效應，造成類重電洞明激子態間的能階差，即實驗觀察到的精細結構分裂，不再完全由長程交換作用力中的 Δ_1 決定，同時也會受短程交換作用力影響而同時被 δ_0 所決定。長程交換作用力與短程交換作用力對精細結構分裂的影響程度，由量子點伸長方向 θ_d 和受應力方向 θ_s 間的夾角所決定。以下分別假設 $\theta_d - \theta_s = 0$ or π 和 $\theta_d - \theta_s = \pm \pi/2$ 兩種情形加以討論。

若量子點抽長方向與受應力方向平行，即 $\theta_d - \theta_s = 0$ or π ，則(4.3)式中，類重電洞明激子的本徵能量為

$$E_{\pm} = \frac{(\delta_0 + \Delta_0) \pm \Delta_1}{2} \pm 2\delta_0\gamma, \quad (4.5)$$

with $\Delta_{FS} = E_+ - E_- = \Delta_1 + 4\delta_0\gamma$ 。

假設 $\theta_d - \theta_s = 0$ ，且 $\theta_d = \theta_s = -\pi/4$ ，此即 $[1\bar{1}0]$ 方向。則 E_{\pm} 態所對應之螢光強度為

$$\begin{aligned} I_+ &= P_0^2(1-\gamma)^2, \quad \text{along } [110], \\ I_- &= P_0^2(1+\gamma)^2, \quad \text{along } [1\bar{1}0], \end{aligned} \quad (4.6)$$

(4.6)式顯示，較低能量的激子態，螢光強度較強，而其偏振不對稱性為

$$P_L = \frac{I_{[110]} - I_{[1\bar{1}0]}}{I_{[110]} + I_{[1\bar{1}0]}} = -\frac{2\gamma}{1+\gamma^2} \quad (4.7)$$

由(4.7)式可以知道，當 $\theta_d - \theta_s = 0$ or π ，激子螢光的偏振不對稱性會是負值。

相反的，若量子點抽長方向與受應力方向垂直，意即 $\theta_d - \theta_s = \pm \pi/2$ ；並且假設量子點抽長方向同樣是沿 $[1\bar{1}0]$ 、而應變方向沿 $[110]$ ，因此 $\theta_d = -\pi/4$ 、

$\theta_s = \pi/4$ 。此時(4.3)式中，類重電洞明激子的本徵能量為

$$E_{\pm} = \frac{(\delta_0 + \Delta_0) \pm \Delta_1 \mp 2\delta_0\gamma}{2}, \quad (4.8)$$

with $\Delta_{FS} = E_+ - E_- = \Delta_1 - 4\delta_0\gamma$ 。

而 E_{\pm} 態所對應之螢光強度則變成

$$\begin{aligned} I_+ &= P_0^2(1+\gamma)^2, \quad \text{along } [110], \\ I_- &= P_0^2(1-\gamma)^2, \quad \text{along } [1\bar{1}0], \end{aligned} \quad (4.9)$$

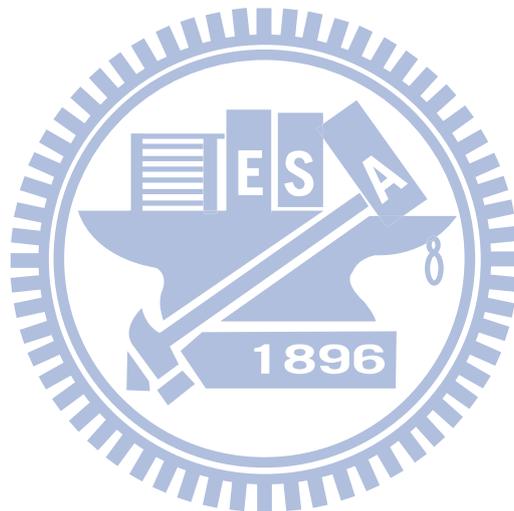
(3.31)式顯示，當 $\Delta_1 > 4\delta_0\gamma$ ，則精細結構分裂 $\Delta_{FS} > 0$ ，且較高能量的激子態螢光強度也較強，而此時的偏振不對稱性為

$$P_L = \frac{2\gamma}{1+\gamma^2} > 0. \quad (4.10)$$

反之，當 $\Delta_1 < 4\delta_0\gamma$ ，精細結構分裂為負值，但其偏振不對稱性同(4.10)式結果，為一正值。

若將【圖 4-13】中的結果分為 A、B 和 C 三區。其中，A 區量子點的激子螢光偏振不對稱性皆為正值，且其精細結構分裂亦為正值。對照理論計算的結果，可以猜測 A 區的量子點伸長方向與受應力作用方向垂直，又因為精細結構分裂為正值顯示 $\Delta_1 > 4\delta_0\gamma$ ，我們推測此量子點中的價電帶混合效應可能較小。另外，B 區量子點中激子螢光的偏振不對稱性同樣為正值，而精細結構分裂為負值顯示其價電帶混合效應可能較 A 區量子點為大。而

C 區量子點，由於其激子螢光偏振不對稱性為負值，代表量子點伸長方向與受應力作用方向相同。同時由【圖 4-11(b)】我們知道，C 區量子點伸長方向沿[110]方向。由於量子點伸長方向的反轉，使得長程交換作用能 Δ_1 為負值，造成精細結構分裂為負值。

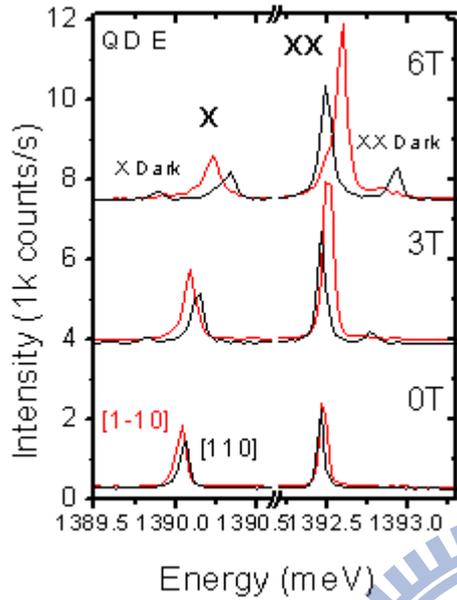


4.3 單量子點磁場顯微螢光光譜

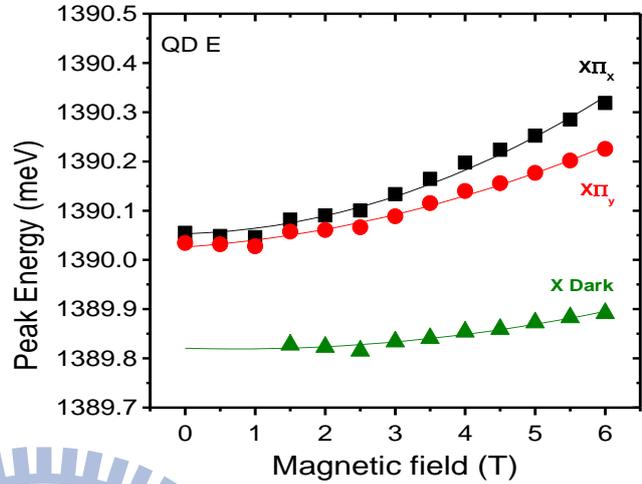
4.2 節的討論證實了單量子點中電子-電洞交換作用力會使得激子能態出現精細結構。此外，單量子點受應力後，透過價電帶混合效應亦造成量子點激子的能態結構改變。而接下來，透過外加水平磁場於量子點，希望能藉此改變激子能態結構，最終目的是讓激子回到簡併能態。

【圖 4.14】為量子點 E 在水平磁場下的螢光光譜。圖(a)顯示單量子點在水平磁場中，激子和雙激子訊號的精細結構分裂會隨著磁場變強而增加。同時也觀察到在高磁場下，分別在能量低於激子螢光以及高於雙激子螢光約 0.5 meV 處多出了一條譜線，其來源是暗激子與明激子的能態混合後，使暗激子有機會跟光子耦合發光，因此能在譜線中觀察到暗激子螢光訊號，且譜線中所觀察到的暗激子極化方向與 π_x 相同。若將各個磁場下，激子螢光訊號的垂直偏振、水平偏振以及暗激子的峰值能量點出，如圖(b)所示，可以清楚看到，隨著磁場的增加，量子點中激子訊號峰值會開始藍移 (Blue shift)。激子螢光能量的改變是由賽曼效應[13]和反磁能移(Diamagnetic shift) [18][19][20]所引起。其中，賽曼效應會增加激子螢光訊號間的精細結構分裂，而反磁能移會使螢光訊號的能量藍移。

(a)



(b)



【圖4-14】 量子點E在 (a) 0T、3T 以及 6T 時的顯微螢光光譜。

(b) 不同磁場下所對應之螢光訊號的峰值能量。

假設單量子點在 x 方向的水平磁場 B_x 中，激子僅受到電子-電洞交換作

用及磁場的作用，因此結合(2.12)式 $H_{ex,hh}^{LR}$ 以及(2.31)式 $H_{B,x}^X$ 可得

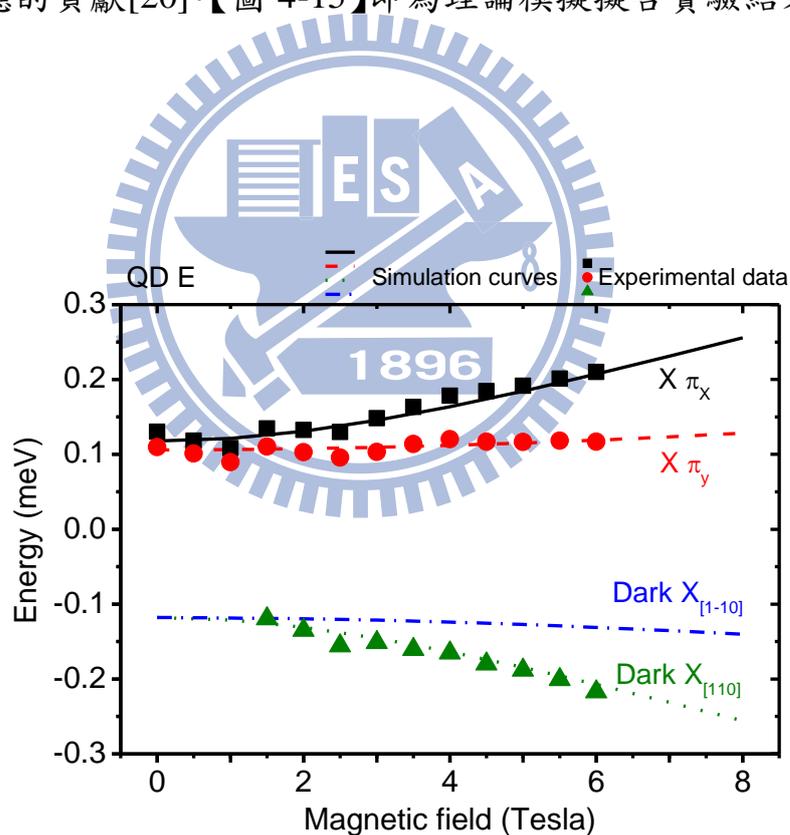
$$H_{B,x}^X = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 + \delta_0 & \tilde{\Delta}_1 & \mu_B B_x g_{e,x} & \mu_B B_x g_{h,x} \\ \Delta_1 & \Delta_0 + \delta_0 & \mu_B B_x g_{h,x} & \mu_B B_x g_{e,x} \\ \mu_B B_x g_{e,x} & \mu_B B_x g_{h,x} & -(\Delta_0 + \delta_0) & \Delta_2 \\ \mu_B B_x g_{h,x} & \mu_B B_x g_{e,x} & \Delta_2 & -(\Delta_0 + \delta_0) \end{pmatrix} \begin{matrix} | +1 \rangle \\ | -1 \rangle \\ | +2 \rangle \\ | -2 \rangle \end{matrix} \quad (4.11)$$

其中， $g_{e,x}$ 、 $g_{h,x}$ 分別為電子和電洞在 x 方向的有效 g 因子。由(4.11)式可看

出，在水平磁場下，明激子態和暗激子態會相互混合，造成激子態

結構改變。

利用(4.11)式的本徵能量和本徵態，可推得量子點 E 在水平磁場中激子螢光訊號隨磁場改變的能量變化，並擬合實驗結果。然而在推導(4.11)式的過程中並未考慮反磁能移，因此需要去除實驗數據中反磁能移的部分。首先取各個磁場下偏振相同的明激子 π_x 和暗激子訊號峰值能量的平均值，由於兩者間並不存在精細結構分裂，兩峰值的平均能量隨磁場增強的變化即為反磁能移。若將實驗數據得到的激子峰值能量減去該平均值，剩下部分即為賽曼效應的貢獻[20]。【圖 4-15】即為理論模擬擬合實驗結果的示意圖。



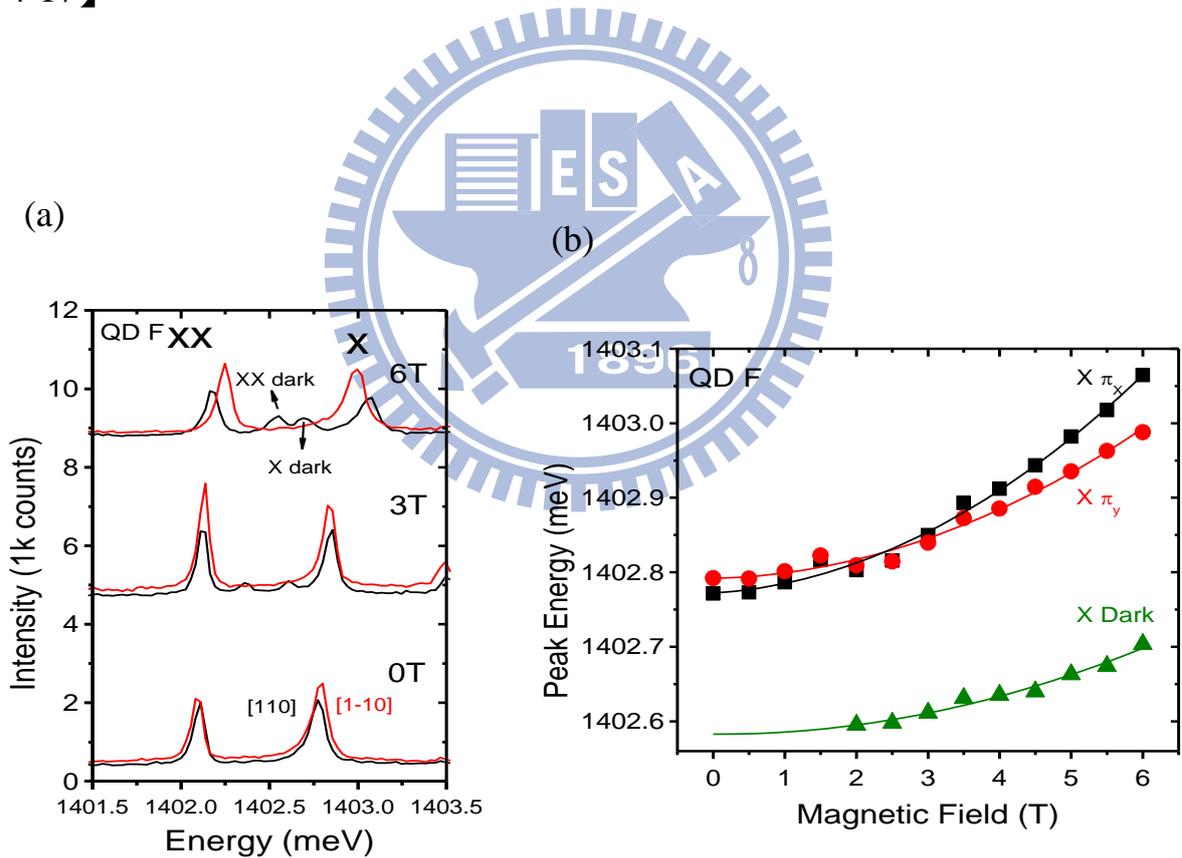
模擬使用參數:

$$\mu_B = 0.05789; g_{e,x} = -0.65; g_{h,x} = -0.33;$$

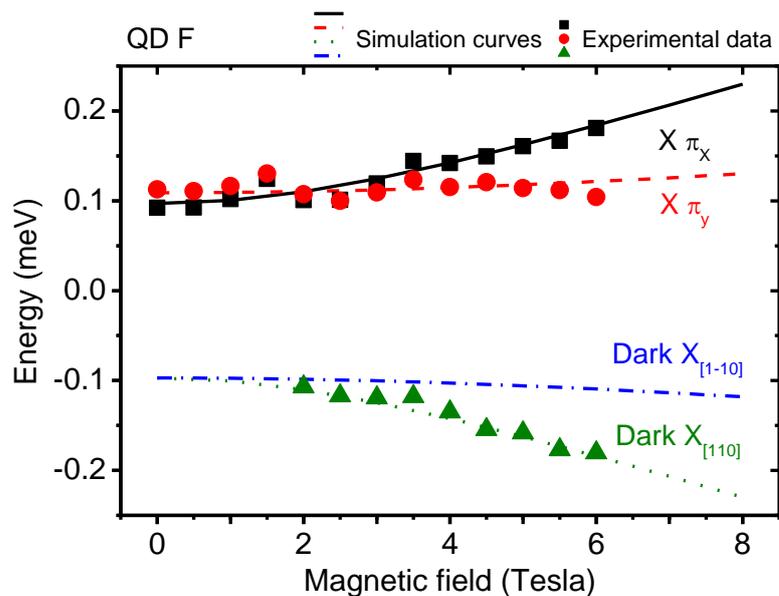
$$\Delta_0 = 0.23 \text{ meV}; \Delta_1 = 0.012 \text{ meV}; \Delta_2 = 0 \text{ meV}$$

【圖4-15】 量子點 E 中，磁場對激子能量關係圖以及理論模擬結果

當外加磁場於量子點 F，激子螢光隨磁場變化的情形如【圖 4-16】所示。由圖(a)可知，外加磁場為零時，精細結構分裂為負值。然而，隨著磁場逐漸增強，精細結構分裂會因為賽曼效應而隨之增大。因此隨著磁場從 0 T 增強到 6 T，精細結構分裂會由 $-16 \mu\text{eV}$ 增加到 $73 \mu\text{eV}$ ，當磁場約為 2.5 T 時，精細結構分裂為零，可推測此時激子態為簡併態。接著，同樣利用理論計算，模擬出激子能量隨磁場增加而變化的情形，結果如【圖 4-17】。



【圖4-16】 量子點 F 在 (a) 0T、3T 以及 6T 時的顯微螢光光譜。
(b) 不同磁場下所對應之螢光訊號的峰值能量。



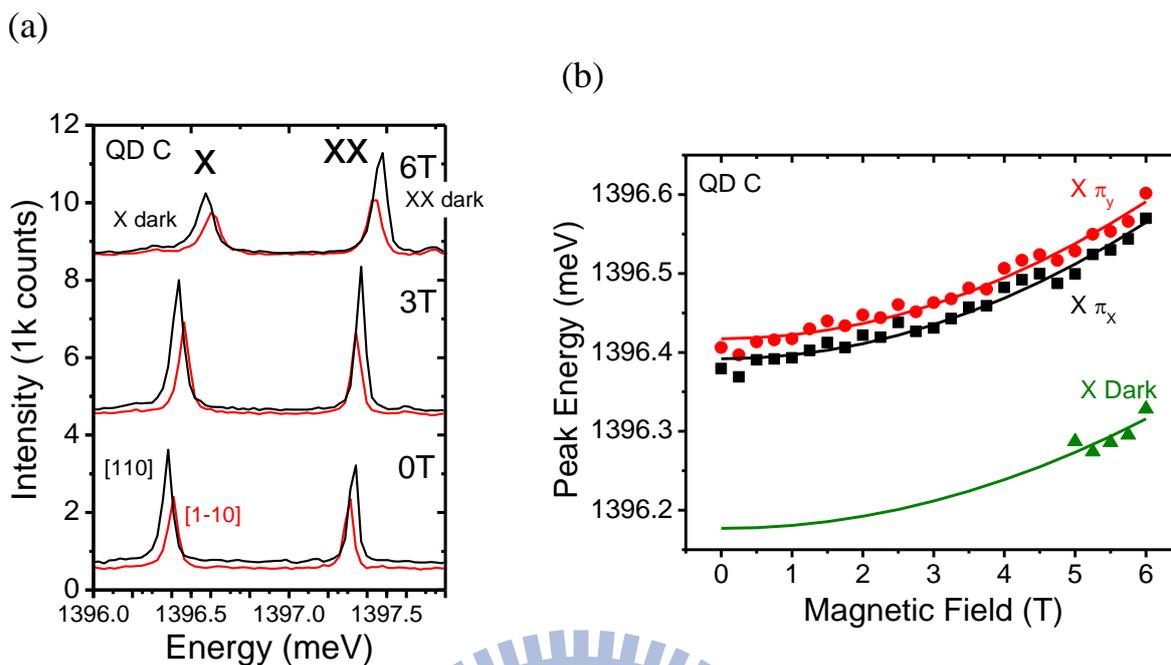
模擬使用參數:

$$\mu_B = 0.05789; g_{e,x} = -0.60; g_{h,x} = -0.30;$$

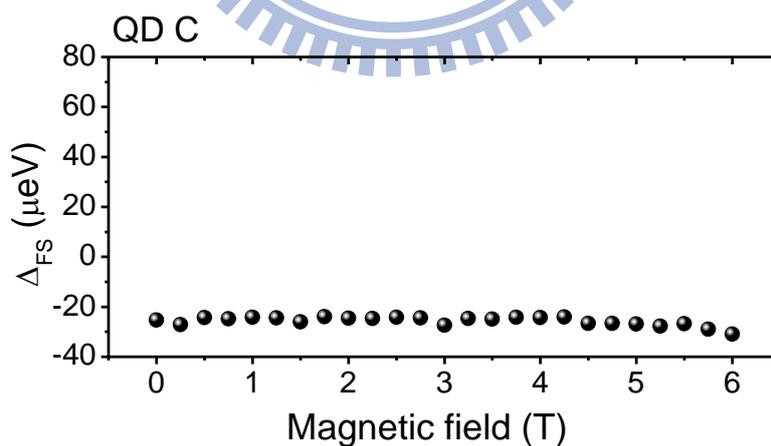
$$\Delta_0 = 0.20 \text{ meV}; \Delta_1 = -0.012 \text{ meV}; \Delta_2 = 0 \text{ meV}$$

【圖4-17】 量子點 F 中，磁場對激子能量關係圖以及理論模擬結果

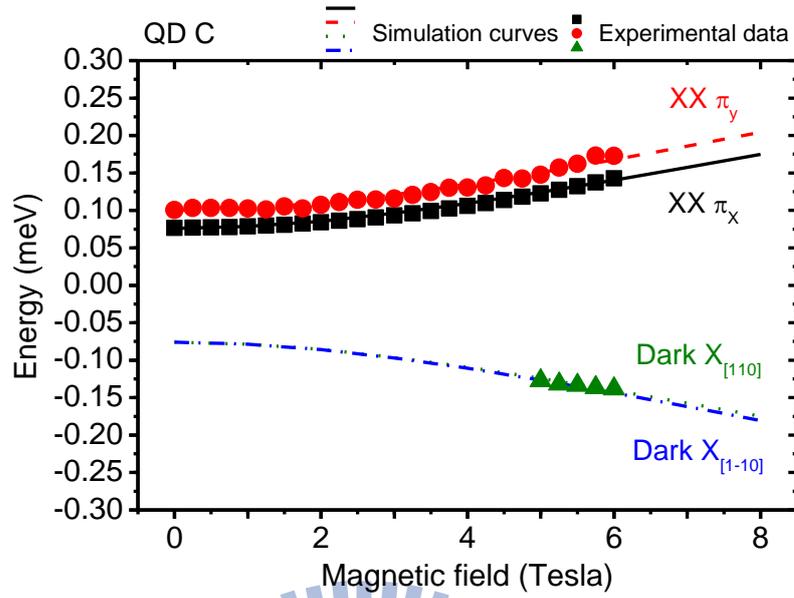
對量子點 C 而言，雖然外加磁場為零時，其精細結構分裂亦為負值，如【圖 4-18】所示。但隨著磁場增加到 6 T，量子點 C 的精細結構分裂依然是負的，觀察【圖 4-19】可知其值幾乎不隨磁場改變。【圖 4-20】為理論模擬量子點 C 中雙激子能量隨磁場變化的結果。比較量子點 E、F 及 C 模擬參數中電洞的 g 因子，可以發現只有量子點 C 的 $g_{h,x}$ 值為正值，且其絕對值僅約另外兩者的十分之一，因此在量子點 C 中賽曼效應較弱。



【圖4-18】 量子點 C 在 (a) 0T、3T 以及 6T 時的顯微螢光光譜。
 (b) 不同磁場下所對應之螢光訊號的峰值能量。



【圖4-19】 量子點 C 中，磁場對激子螢光精細結構分裂關係圖



模擬使用參數:

$$\mu_B = 0.05789; g_{e,x} = -0.71; g_{h,x} = 0.03;$$

$$\Delta_0 = 0.164 \text{ meV}; \Delta_1 = -0.024 \text{ meV}; \Delta_2 = 0 \text{ meV}$$

【圖4-20】 量子點 C 中，磁場對雙激子能量關係圖以及理論模擬結果

接著考慮量子點同時受電子-電洞交換作用、價電帶混合效應以及水平磁場下賽曼效應的影響，此時漢米爾頓方程式如下(推導過程詳見附錄)

$$H_{B,ex}^X \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \tilde{\Delta}_1 + 4(\delta_0 + \frac{\sqrt{3}}{2} \beta) \tilde{\gamma} \\ \tilde{\Delta}_1^* + 4(\delta_0 + \frac{\sqrt{3}}{2} \beta) \tilde{\gamma}^* & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \downarrow; \psi_h^+ \\ \uparrow; \psi_h^- \end{pmatrix}. \quad (4.12)$$

其中

$$\beta = \frac{(g_e \perp g_{h1})}{(\delta_0 + \Delta_0)} \mu_B^2 B^2, \quad (4.13)$$

當 $g_{e \perp} g_{h1} < 0$ ， β 為負值；且 β 與水平磁場的方向無關。

經由 4.2.2 節的分析，已知量子點會因為受應力造成重電洞態和輕電洞態相互混成，使其螢光譜線存在偏振不對稱。接著，若將量子點外加水平磁場，由附錄中的推導過程和(4.12)式，可知當水平磁場作用於量子點，會使其明激子態 $|\downarrow; \psi_h^+\rangle$ 和暗激子態 $|\uparrow; \psi_h^-\rangle$ 亦相互混合，而這兩者混合的程度與磁場大小成平方關係，並改變了精細結構分裂；因此我們應該能夠藉由量測量子點螢光譜線的偏振不對稱性和賽曼效應，反推量子點所受應力及量子點伸長量(與無電子-電洞交換作用時的精細結構分裂有關)。

接下來，利用(4.12)式的本徵能量和本徵態，分兩種情況討論實驗結果，

$\theta_d - \theta_s = 0 \text{ or } \pi$ 或 $\theta_d - \theta_s = \pm \frac{\pi}{2}$ 。當量子點抽長方向與受應力方向平行，即

$\theta_d - \theta_s = 0 \text{ or } \pi$ ，可得 $H_{B,ex}^X$ 的本徵能量為

$$E_{\pm} = \pm \frac{\Delta_1}{2} \pm 2 \left(\delta_0 + \frac{\sqrt{3}}{2} \beta \right) \gamma, \quad (4.14)$$

$$\text{with } \Delta_{FS} = E_+ - E_- = \Delta_1 + 4 \left(\delta_0 + \frac{\sqrt{3}}{2} \beta \right) \gamma.$$

由(4.14)式可知，當量子點抽長方向與受應力方向平行，激子的精細結構分裂會隨著水平磁場的增強而變小。結合 4.2.2 節中，量子點受價電帶混合效應後偏振不對稱性的分析結果，由於量子點 C 的偏振不對稱性較小，推測所受應力較小，使其價電帶混合效應較弱。此外，電洞的 g 因子也與量子點所受應力有關[14][15]，因此如同【圖 4-20】模擬的結果，量子點 C 的 $g_{h,x}$ 值相較於其他量子點小了許多。

若量子點抽長方向與受應力方向垂直，即 $\theta_d - \theta_s = \pm \frac{\pi}{2}$ ，假設量子點伸長方向沿 $[1\bar{1}0]$ 、受應力方向沿 $[110]$ ，也就是 $\theta_d = -\frac{\pi}{4}$ 、 $\theta_s = \frac{\pi}{4}$ 。此時本徵能量為

$$E_{\pm} = \pm \frac{\Delta_1}{2} \mp 2 \left(\delta_0 + \frac{\sqrt{3}}{2} \beta \right) \gamma, \quad (4.15)$$

$$\text{with } \Delta_{FS} = E_+ - E_- = \Delta_1 - 4 \left(\delta_0 + \frac{\sqrt{3}}{2} \beta \right) \gamma.$$

綜合 4.2.2 節的結果可知，在量子點抽長方向與受應力方向垂直的情況下，若磁場為零時 $\Delta_1 > 4\delta_0\gamma$ ，此時激子螢光 π_x 強度較強、偏振不對稱性 $P_L = \frac{2\gamma}{1+\gamma^2} > 0$ 。接著外加水平磁場，會發現激子的精細結構分裂隨著磁場增強而變大。

另外，有一些量子點，受應力引起的價電帶混合效應較強，也就是 $\Delta_1 < 4\delta_0\gamma$ ，此時激子的精細結構分裂為負值、偏振不對稱性 $P_L = \frac{2\gamma}{1+\gamma^2}$ 為正值。若外加水平磁場，其精細結構分裂會隨著磁場的增加由負值逐漸變成正值。因此對於這些量子點，我們能夠利用外加水平磁場將其精細結構分裂變為零。

第五章 結論

在本論文中，我們量測砷化銦單量子點的顯微螢光光譜，並藉著改變激發雷射功率及偏振性，辨認激子、雙激子、正激子以及負激子的螢光訊號。利用單量子點激子螢光訊號以及理論模擬，分析單量子點中的激子能態，藉此了解在應變和磁場的作用下激子能態的變化。

在研究單量子點激子螢光的偏振性時，我們模擬出單量子點在電子-電洞交換作用影響下激子螢光譜線的精細結構。然而，在分析偏振螢光光譜的過程中，我們發現單量子點激子具有偏振不對稱性，此現象並未出現於理論模擬。於是我們引入應變對量子點的影響，也經由計算發現單量子點在應變作用下會發生價電帶混合效應，使重電洞和輕電洞能態耦合，並且改變激子能態結構，因而造成螢光的偏振不對稱性。接著，我們加入了水平磁場，隨著磁場增強，我們觀察到反磁能移及賽曼效應，前者造成單量子點激子螢光能量的藍移，後者則顯現於精細結構分裂的改變。另外，對於某些單量子點，其精細結構分裂在零磁場時為負值，且在水平磁場作用下，精細結構分裂可能會由負值逐漸變為正值。由此可知，透過外加磁場，我們可以改變單量子點的激子能態，使其變成簡併態。

附錄

考慮量子點同時受電子-電洞交換作用、價電帶混合效應以及水平磁場的影響。結合(2.30)式 $H_{B,xy}^h$ 以及(2.20)式 H_{BP} ，並以 $|+3/2\rangle$ 、 $|-3/2\rangle$ 、 $|+1/2\rangle$ 和 $|-1/2\rangle$ 為基底，可得

$$H_h = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{1}{2}\hbar\Omega_{h3}e^{+i\varphi} & -\frac{1}{2}\hbar\Omega_{h1}e^{-i\varphi} & \rho e^{-2i\theta} \\ -\frac{1}{2}\hbar\Omega_{h3}e^{-i\varphi} & 0 & \rho e^{+2i\theta} & -\frac{1}{2}\hbar\Omega_{h1}e^{+i\varphi} \\ -\frac{1}{2}\hbar\Omega_{h1}e^{+i\varphi} & \rho e^{-2i\theta} & \Delta_{lh} & -\frac{1}{2}\hbar\Omega_{h2}e^{-i\varphi} \\ \rho e^{+2i\theta} & -\frac{1}{2}\hbar\Omega_{h1}e^{-i\varphi} & -\frac{1}{2}\hbar\Omega_{h2}e^{+i\varphi} & \Delta_{lh} \end{pmatrix} \begin{matrix} | +3/2 \rangle \\ | -3/2 \rangle \\ | +1/2 \rangle \\ | -1/2 \rangle \end{matrix}.$$

其中 $\hbar\Omega_{hi} = \mu_B B g_{hi}$ 。在弱價電帶混合效應近似下，可將 $4 \times 4 H_h$ 矩陣，簡化為 $2 \times 2 H'_h$ 矩陣。此時，激子中的電子受賽曼效應影響，而電洞同時受賽曼效應和價電帶混合效應作用，因此激子的漢米爾頓方程式可寫為

$$H_B^X \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \tilde{\Delta}_1 + 4\delta_0 \tilde{\gamma} & \mu_B g_{e\perp} B e^{+i\varphi} & 2\sqrt{3}\mu_B g_{h1} B \tilde{\gamma} e^{-i\varphi} \\ \tilde{\Delta}_1 + 4\delta_0 \tilde{\gamma}^* & 0 & 2\sqrt{3}\mu_B g_{h1} B \tilde{\gamma}^* e^{i\varphi} & \mu_B g_{e\perp} B e^{-i\varphi} \\ \mu_B g_{e\perp} B e^{-i\varphi} & 2\sqrt{3}\mu_B g_{h1} B \tilde{\gamma} e^{-i\varphi} & -2(\delta_0 + \Delta_0) & 0 \\ 2\sqrt{3}\mu_B g_{h1} B \tilde{\gamma}^* e^{i\varphi} & \mu_B g_{e\perp} B e^{+i\varphi} & 0 & -2(\delta_0 + \Delta_0) \end{pmatrix} \begin{matrix} |\downarrow; \psi_h^+\rangle \\ |\uparrow; \psi_h^-\rangle \\ |\uparrow; \psi_h^+\rangle \\ |\downarrow; \psi_h^-\rangle \end{matrix},$$

若將非對角線項中賽曼效應的貢獻視為微擾，則上式可簡化為

$$H_{B,ex}^X \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \tilde{\Delta}_1 + 4\left(\delta_0 + \frac{\sqrt{3}}{2}\beta\right)\tilde{\gamma} \\ \tilde{\Delta}_1 + 4\left(\delta_0 + \frac{\sqrt{3}}{2}\beta\right)\tilde{\gamma}^* & 0 \end{pmatrix} \begin{matrix} |\downarrow; \psi_h^+\rangle \\ |\uparrow; \psi_h^-\rangle \end{matrix}.$$

其中 $\beta = \frac{(g_{e\perp} g_{h1})}{(\delta_0 + \Delta_0)} \mu_B^2 B^2$ ，當 $g_{e\perp} g_{h1} < 0$ ， β 為負值，且 β 與水平磁場的方向無關。

參考資料

- [1] S. Coe, W. K. Woo, M. Bawendi, V. Bulovic, Nature 420, 800-803 (2002).
- [2] N. -M. Park, T. S. Kim, S. -J. Park, Appl. Phys. Lett. 78, 2575 (2001).
- [3] J. C. Kim, et al., Appl. Phys. Lett. 73, 3399 (1998).
- [4] L. Landin, M.S. Miller, M.E. Pistol, C.E. Pryor, L. Samuelson, Science 280, 262 (1998).
- [5] M. Bayer, et al., Nature 405, 923 (2000).
- [6] R.B. Bylsma, et al., Phys. Rev. B 33, 8207 (1986).
- [7] J.K. Furdyna, J. Appl. Phys. 64, R29 (1988).
- [8] M. A. KASTNER, Rev. Mod. Phys. 64, 849 (1992).
- [9] N. Akopian, et al., Phys. Rev. Lett. **96**, 130501(2006)
- [10] L'eger Y, et al., Phys. Rev. B **76** 045331 (2007)
- [11] S. L. Chuang “Physics of Optoelectronic Devices”, Second Edition, Wiley (2008)
- [12] W. Sheng, S.-J. Cheng, and P. Hawrylak, Phys. Rev. B, **71**, 035316 (2005).
- [13] M. Bayer, et al., Phys. Rev. B 65, 195315 (2002).
- [14] H.W. van Kasteren, et. al., Phys. Rev. B 41, 5283 (1990)
- [15] E. Blackwood, et. al., Phys. Rev. B 50, 14246 (1994)
- [16] M.Z. Maille, E.A. de Andrada e Silva, and L. J. Sham, Phys. Rev. B 47, 15776 (1993).
- [17] U. W. Pohl, et al., Phys. E, 35 282 (2006).
- [18] S. N. Walck, and T. L. Reinecke, Phys. Rev. B 57, 9088 (1998)
- [19] M. Bayer, et al., Phys. Rev. B 57, 6584 (1998)
- [20] R. M. Stevenson, et al., Phys. Rev. B 73, 033306 (2006).