

國立交通大學

電子物理研究所

碩士論文

砷化銦單量子點藉應力調變激子能階

Stress Tuning of Exciton States in InAs
Single Quantum Dots

研究生：林健家

指導教授：張文豪 教授

中華民國一百年七月

砷化銦單量子點藉應力調變激子能階

Stress Tuning of Exciton States in InAs Single Quantum Dots

研 究 生：林健家

Student：Chien-Chia Lin

指導教授：張文豪 教授

Advisor：Wen-Hao Chang



July 2011

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國一百年七月

砷化銦單量子點藉應力調變激子能階

學生:林健家

指導教授：張文豪 博士

國立交通大學電子物理所

摘要

砷化銦量子點的激子螢光具有精細結構分裂的性質，源於量子點的形狀不對稱。根據 Bir-Pikus 漢米爾頓方程式來探討精細結構分裂，與量子點應變量之間的關係。我們嘗試利用壓電材料來對量子點外加應力；在實驗時激子能階確實會隨著外加應力而改變，證實了外加應力的確是能對量子點形狀造成影響。且激子精細結構分裂的大小也能靠外加應力來改變；實驗數據也能和理論值相符合。代表利用外加應力的方式，是有可能將單量子點的激子能態給變為簡併態。

Stress Tuning of Exciton States in InAs Single Quantum Dots

Student : Chien-Chia Lin

Advisor : Prof. Wen-Hao Chang

Department of Electrophysics
National Chiao Tung University

ABSTRACT

The fine structure splitting (FSS) of exciton emission from single InAs/GaAs quantum dots (QDs) are investigated. The excitonic FSS is attributed to the QD shape asymmetry reduction. Based on the formalism of the Bir-Pikus Hamiltonian, the interplay between the FSS and stress are discussed. We apply the stress to the QD by piezoelectric materials. In the experiment, the excitonic energy level does change with the external stress, confirming the external stress can indeed affect the shape of quantum dots. The FSS also can be changed by the external stress. Experimental data are consistent with the theoretical anticipation. Using the way of applying stresses, the single quantum dot excitonic states are possible to become degenerate states.

誌謝

時光匆匆，來到交大的兩年轉眼間就過去了，感覺自己才剛考上研究所不久而已。連當時辛苦準備考試的那段時光，都還歷歷在目。回想起第一次到外縣市居住，東南西北都還分不清楚；在實驗室裡，所接觸到的每樣儀器也都相當陌生。看著學長姊們用高超的技巧來完成實驗架設、研究著艱難的物理問題，讓我開始擔心自己是否能應付得過來。但幸好靠著許多人的幫助，才能順利走過來。首先要感謝我的父母，能支持我的想法，讓我無後顧之憂地完成學業。我的指導教授張文豪老師，要感謝您這兩年的教導與照顧。剛進實驗室時，就熱心地為我們講解實驗的架構與技巧、做研究所需的邏輯與概念。雖然嚴厲，但同時也為我們著想，在我迷惘時給了许多意見，帶領著我完成論文。而也很抱歉給您添了许多麻煩。再來要感謝林聖迪老師，能提供樣品來讓我完成研究。也謝謝鄭舜仁在理論計算方面所提供的幫助。還有要感謝李明知老師、周武清老師、和陳衛國老師，教導我許多半導體方面的知識，以及在開會時能對我的報告提供許多寶貴的意見。

而我能順利度過研究所的兩年，都要多虧了家賢學長和小周學姊；謝謝你們在實驗操作與理論方面的教導，也陪著我度過無數個熬夜實驗的日子。還有要感謝幫忙製作元件的詠盛和若榕，沒有你們論文也將無法完成。也謝謝教導我們如何享受新竹生活的佺哲學長。而眾學長姊們，林萱、昱安、

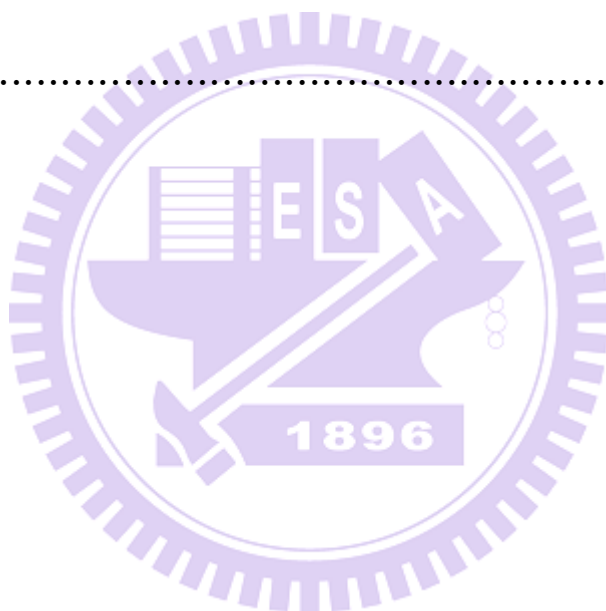
大雄、京玉、少甫、家和、阿龐、士興、志豪、道偉、芳葦，都是我研究所生涯中的模範，在大家的身上學到了很多東西。而跟我一起度過這兩年的好兄弟們，國榮、峰菖、詠盛、勃亨、珏愷，那個大家經常一起熬夜做投影片的日子我不會忘記的。還有可愛的學弟妹們，若榕、詩涵、翊瑩、韋辰、柏維，雖然只跟大家相處一年，還是幫了我不少忙，謝謝你們。



目錄

中文摘要		i
英文摘要		ii
誌謝		iii
目錄		v
圖目錄		vii
表目錄		ix
第一章	緒論.....	1
1.1	前言.....	1
1.2	研究動機.....	2
第二章	理論背景.....	4
2.1	光激螢光的偏振性.....	4
2.2	電子-電洞交換作用	6
2.3	價電帶混合效應.....	11
2.4	精細結構分裂和應變量之關係.....	15
第三章	樣品與實驗裝置.....	19
3.1	樣品結構與製備.....	19
3.2	壓電材料 PMN-PT 的介紹	21
3.3	顯微光激螢光量測系統.....	29

第四章	光譜分析與討論·····	32
4.1	單量子點顯微光激螢光光譜·····	32
4.2	不同應變時的單量子點顯微光激螢光光譜·····	40
4.3	不同應變時的單量子點精細結構分裂·····	50
4.4	不同應變時的單量子點偏振螢光光譜·····	60
4.5	單量子點的糾纏態程度·····	64
第五章	結論·····	71
參考資料	·····	72



圖目錄

【圖 1-1】	量子點中的電子和電洞，經輻射復合而發出左旋光(σ^+)或右旋光(σ^-)。.....	3
【圖 1-2】	理想狀態下的量子點雙激子系統。.....	3
【圖 2-1】	量子點激子的光激螢光模擬光譜；右上圖是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；右上圖是激子螢光強度偏振圖。.....	14
【圖 2-3】	模擬應變不對稱性對精細結構分裂的關係圖。.....	18
【圖 3-1】	砷化銦量子點樣品結構圖。.....	19
【圖 3-2】	可外加應力之砷化銦量子點元件結構圖。.....	20
【圖 3-3】	ABO ₃ 型化合物結構示意圖。.....	21
【圖 3-4】	壓電材料形變方式示意圖。.....	22
【圖 3-5】	壓電材料內電偶極矩分布示意圖。.....	23
【圖 3-6】	壓電材料在不同偏壓時的形變方式示意圖。圖(a)是極化過後的晶體。圖(b)是施加順向偏壓，晶體相應電場方向被伸長，但在側邊是被壓縮。圖(c)是施加逆向偏壓，晶體相應電場方向被壓縮，但在側邊是被伸張。.....	25
【圖 3-7】	本論文所使用的 PMN-PT，利用掃描式電子顯微鏡來觀察材料的厚度。.....	26
【圖 3-8】	不同晶面的 PMN-PT 在順向偏壓時，受應力方向示意圖。圖(a)和(b)分別是對應到晶面方向[001]和[011]。.....	28
【圖 3-9】	顯微光激螢光量測系統實驗裝置圖。.....	31
【圖 4-1】	量子點顯微光激螢光光譜圖。.....	32
【圖 4-2】	不同雷射激發功率下，量子點的顯微光激螢光光譜圖。.....	34
【圖 4-3】	雷射激發功率對螢光強度的關係圖。.....	35
【圖 4-4】	激子和雙激子的相干性量測結果。.....	37
【圖 4-5】	激子和雙激子分別在兩個偏振方向的光激螢光光譜。.....	38
【圖 4-6】	圖(a)和(b)分別是利用法布立—培若干涉儀來量測激子和雙激子的譜圖。使用的共振腔模間距(Free spectral range, FSR)為 30 GHz。.....	39
【圖 4-7】	對 PMN-PT 施加不同偏壓時的激子螢光光譜圖。.....	45
【圖 4-8】	圖(a)為模擬所設定的量子點樣品結構。圖(b)為截角金字塔量子點細部結構。.....	46
【圖 4-9】	雙軸應力元件的模擬結果，設定 PMN-PT 在 x 和 y 方向同時有 0.50 %的應變量變化。圖(a)為量子點樣品結構。圖(b)為沿著量子點中心，量子點樣品所模擬的應變量大小。圖	

(c)和(d)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量大小。圖(e)和(f)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量變化。……	47
【圖 4-10】單軸應力元件的模擬結果，設定 PMN-PT 在 x 和 y 方向分別有 0.88 ‰和-0.36 ‰的應變量變化。圖(a)為量子點樣品結構。圖(b)為沿著量子點中心，量子點樣品所模擬的應變量大小。圖(c)和(d)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量大小。圖(e)和(f)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量變化。……	48
【圖 4-11】單軸和雙軸應力元件沿著量子點中心，所模擬的能隙變化量。……	49
【圖 4-12】雙軸應力元件，分別在 300 V、0 V 和-300 V 時的量測偏振螢光光譜。其中 300 V 是給樣品額外的壓縮應力；-300 V 是給樣品額外的伸張應力。……	51
【圖 4-13】單軸應力元件，分別在 600 V、0 V 和-400 V 時利用法布立一培若干涉儀量測激子的精細結構分裂。其中 600 V 是給樣品額外的壓縮應力；-400 V 是給樣品額外的伸張應力。…	52
【圖 4-14】單軸應力元件，分別在 600 V、0 V 和-400 V 時利用法布立一培若干涉儀量測雙激子的精細結構分裂。……	53
【圖 4-15】雙軸應力和單軸應力的元件，施加偏壓和精細結構分裂關係圖。……	54
【圖 4-16】單軸應力元件的模擬結果，設定 PMN-PT 在 x 和 y 方向分別有 1.47 ‰和-0.60 ‰的應變量變化。圖(a)為量子點樣品結構。圖(b)為沿著量子點中心，量子點樣品所模擬的應變量大小。圖(c)和(d)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量大小。圖(e)和(f)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量變化。……	56
【圖 4-17】應變不對稱性對激子精細結構分裂變化量之關係圖。……	59
【圖 4-18】單軸應力元件；施加偏壓和精細結構分裂關係圖。線條是理論估計的結果。圓點是實驗所量測的值。……	59
【圖 4-19】圖(a)為不同偏壓時偏振角對螢光強度關係。圖(b)為偏振角對螢光能量關係。……	62
【圖 4-20】不同偏壓時的螢光強度偏振方向與螢光能量偏振方向。…	63
【圖 4-21】不同偏壓時的激子螢光偏振不對稱性。……	63
【圖 4-22】圖(a)為理想狀態下的量子點雙激子系統。圖(b)為實際情形的量子點雙激子系統。……	66
【圖 4-23】在 0 V 和-400 V 時，事件 HH 和 HV 的相干性量測。……	67
【圖 4-24】在 0 V 和-400 V 時，事件 RR 和 RL 的相干性量測。……	68
【圖 4-25】在 0 V 和-400 V 時，事件 DD 和 $D\bar{D}$ 的相干性量測。……	69

表目錄

【表 3-1】	晶面方向[001]和[011]的 PMN-0.28PT，所對應到各個方向的壓電常數。·····	28
【表 4-1】	在偏壓變化量為 600 V 的情況下，實驗所量測到激子螢光能量變化量；與所推算出對應的量子點應變量變化。·····	42
【表 4-2】	在偏壓變化量為 600 V 的情況下，模擬所得到激子螢光能量變化量；與所推算出對應的量子點應變量變化。·····	44



第一章 緒論

1.1 前言

隨著科技的不斷進步，各種電子產品也漸漸地影響我們的生活。近年來各種產品的零件逐漸微型化，甚至是奈米尺度，將不再完全遵循於古典物理。之後將是由量子物理所主導的世界，也就是奈米科技。奈米科技發展至今，已運用在許多傳統元件上；如發光二極體[1][2]、雷射[3]-[5]、光偵測器[6][7]、電晶體[8]等。接下來的科技將往能夠操縱單一原子、單一光子或單一電子的量子科技邁進。

量子資訊科學中的量子計算和量子通訊方面，在量子物理的世界下是有可能實現的。現行的數位資料儲存或處理，都是將其看成二進位的運算來進行；二進位的 1 和 0 也成了資訊處理的最小單位。但若是以量子態 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle$ 來表示二進位，此又稱為量子位元(Quantum bit, Qubit)；由於量子態具有疊加性和糾纏態等特性，將可大量提升計算速度與資訊儲存空間。

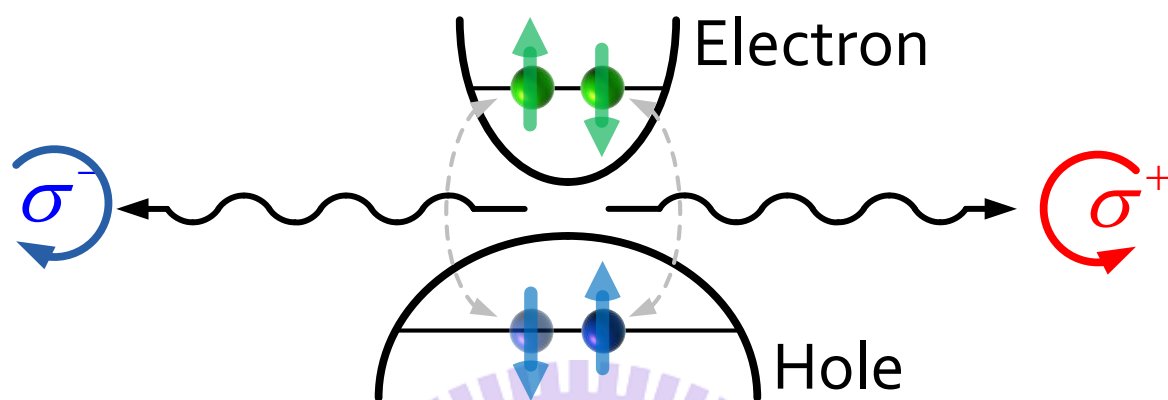
1.2 研究動機

在量子物理系統中，量子同調性容易受到干擾而被破壞。為了實現能在量子計算過程中，保持著量子特性的系統，我們使用了量子點系統[9]。量子點是三個方向皆被侷限的零維系統，電子在量子點內會受到量子侷限(Quantum confinement)效應的影響，使電子能量分布呈現不連續性，像是在原子中一般；因此量子點又稱為人造原子。

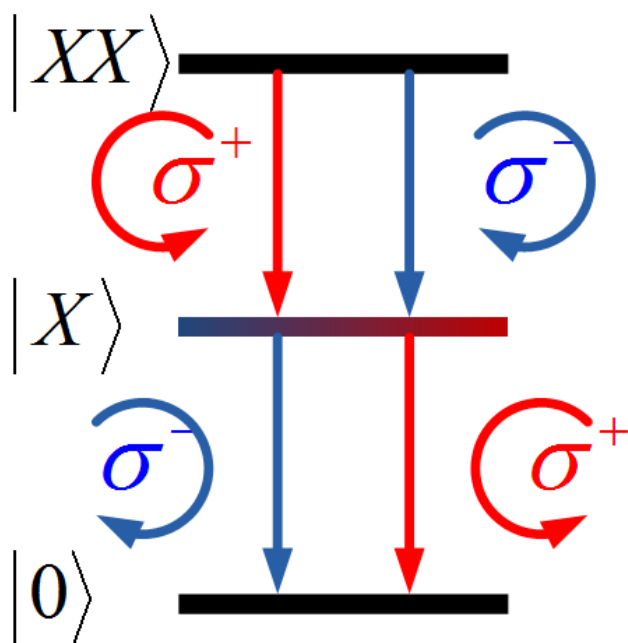
當量子點中同時存在電子和電洞時，兩者會因庫倫作用力束縛而形成激子(Exciton)，並經由輻射復合而放出光子；可用激子來定義為量子態。在理想的量子點中，激子可與角動量+1 或-1 的光子耦合，而發出左旋光或右旋光，如【圖 1-1】。若是量子點中同時存在兩組電子電洞對，則會形成雙激子；會分別進行輻射復合，依序發出左旋光和右旋光，此稱串連放射(Cascade emission)。若是當激子為簡併態時，放出的光子將會是先左旋光後右旋光、或是先右旋光後左旋光，同時存在這兩種可能性；是為量子力學中的疊加性。並且此兩種可能性所代表的量子態是不可被因式分解的，表示先後放出的光子互為糾纏態，如【圖 1-2】。

但實驗結果顯示，量子點的激子螢光並非圓偏振光，而是線偏振光。並且在兩種偏振時，其激子能量並非簡併態，存在著精細結構分裂(Fine structure splitting)。因此本研究將探討精細結構分裂的成因，並利用外加應力來改變量子點本身的應變量，希望藉此減少或消除精細結構分裂，重新

使量子點激子變回簡併態。



【圖 1-1】 量子點中的電子和電洞，經輻射復合而發出左旋光(σ^+)或右旋光(σ^-)。



【圖 1-2】 理想狀態下的量子點雙激子系統。

第二章 理論背景

2.1 光激發光的偏振性

量子點內的激子，是由傳導帶的電子與價電帶的電洞所構成。當這組電子電洞對進行輻射複合，便會放出一顆光子，此光子能量即為激子訊號。激子內電子和電洞有各自的自旋態，且電子和電洞之間的相對作用，將會影響激子的狀態，包括能量、偏振和輻射複合機率等。

傳導帶的電子自旋態以 s_e (Magnetic quantum number of electron) 表示，將其投影在 z 方向可寫作 $|s_e = \pm \frac{1}{2}\rangle$ 。價電帶的電洞自旋態以 j (Angular momentum quantum number of hole) 和 m_h (Magnetic quantum number of hole) 表示，寫作 $|j, m_h\rangle$ 。電洞擁有 $j = \frac{3}{2}, \frac{1}{2}$ 兩種形式，在此只考慮 $j = \frac{3}{2}$ 的電洞，將其投影在 z 方向有 $m_h = \pm \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2}$ 四種自旋態。 $m_h = \pm \frac{3}{2}$ 是代表重電洞， $m_h = \pm \frac{1}{2}$ 是代表輕電洞，分別是[11]

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

將激子的自旋態表示為 $(s_e; m_h)$ ，重電洞激子和輕電洞激子的自旋態分別為 $\left(\pm \frac{1}{2}; \pm \frac{3}{2}\right)$ 和 $\left(\pm \frac{1}{2}; \pm \frac{1}{2}\right)$ 。而組成激子的電子電洞對進行輻射複合的機率，可經由費米黃金定律(Fermi's golden rule)得知為

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

其中， $\hat{e} = \hat{x} \cos \phi + \hat{y} \sin \phi$ 為 XY 平面上的單位向量，與激子螢光的偏振方向有關； $|i\rangle, |j\rangle$ 為激子的初始狀態和結束狀態； $\bar{p}$ 為動量算符(Momentum operator)；

在激子輻射復合的過程中，其初始狀態和結束狀態分別為

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

$\chi_e(r)$ 、 $\chi_h(r)$ 分別為電子和電洞態的波包函數(Envelop function)。而激子的偶極矩陣元素(Dipole matrix elements)可由關係式 $\langle 0 | \hat{e} \cdot \bar{p} | e; h \rangle = \langle v | \hat{e} \cdot \bar{p} | c \rangle$ 求得[12]。以重電洞明激子(Bright exciton)為例，其總自旋角動量為 $s_e + m_h = \pm 1$ ，而偶極矩陣元素可計算得到

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

其中 $\langle S | p_x | X \rangle = \langle S | p_y | Y \rangle = \langle S | p_z | Z \rangle = \frac{im_0 P}{\hbar} \equiv iP_0$ ， P 為肯恩參數(Kane parameter)。

則重電洞激子和輕電洞激子發生輻射復合放光的機率為

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

由上式可知，當激子總自旋角動量 $s_e + m_h = \pm 1$ ，會和偏振態 $\sigma^\pm$ 的圓偏振光耦

合，放出圓偏振螢光。

2.2 電子-電洞交換作用

在無外加磁場情況下，量子點中的電子和電洞會因為電子-電洞交換作用(Electron-hole exchange interaction)而耦合。在不同自旋態時，電子和電洞各有不同的分佈範圍，其之間距離也會有所不同。而電子電洞間的距離就產生了庫倫位能，進而影響激子的能量。

在此分為兩部分討論，短程(Short range)和長程(Long range)作用[13] [14]。短程作用發生在當電子和電洞是存在於同一個單位晶胞(Unit cell)時。長程作用則是電子和電洞不在同一個單位晶胞時，也可視為兩個偶極間的交換作用。

首先考慮短程作用，電子-電洞交換作用的漢米爾頓(Hamiltonian)方程式可表示為

$$\begin{aligned} H_{ex} &= -\frac{2}{3} \delta_{SR} \hat{J}_h \cdot \hat{S}_e \\ &= -\frac{2}{3} \delta_{SR} \left[\frac{1}{2} (J_{h+} S_{e-} + J_{h-} S_{e+}) + J_{h,z} S_{e,z} \right] \end{aligned} \quad (2.6)$$

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

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

而 z 方向在接下來的討論皆定義為磊晶成長方向。當電洞本徵函數基底為

$\left|\pm\frac{3}{2}\right\rangle$ 和 $\left|\pm\frac{1}{2}\right\rangle$ ，其角動量算符 $\hat{J}_h$ 的分量 $J_{h,x}$ 、 $J_{h,y}$ 和 $J_{h,z}$ 分別是

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

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

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

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

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

只考慮重電洞部分，可將(2.9)式簡化為

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

其中 $\delta_0 = I_{hh}\delta_{SR}$ 。由(2.11)式可知短程交換作用會造成重電洞激子能階的分裂，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 。而長程電子-電洞交換作用的漢米爾頓方程式

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

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，受到短程和長程作用的綜合影響為

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

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。其本徵值和本徵能態為

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

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

利用(2.5)式激子複合發光躍遷率的計算，得到的螢光強度 $I_{\pm}$ 為

$$I_{\pm}(\phi) = |\hat{e} \cdot \langle 0 | \vec{p} | \Phi_{\pm} \rangle|^2 = \left| (-iP_0) \frac{\left[\left(\frac{e^{+i\phi}}{\sqrt{2}} \right) \pm e^{2i\theta_d} \left(\frac{e^{-i\phi}}{\sqrt{2}} \right) \right]}{\sqrt{2}} \right|^2$$

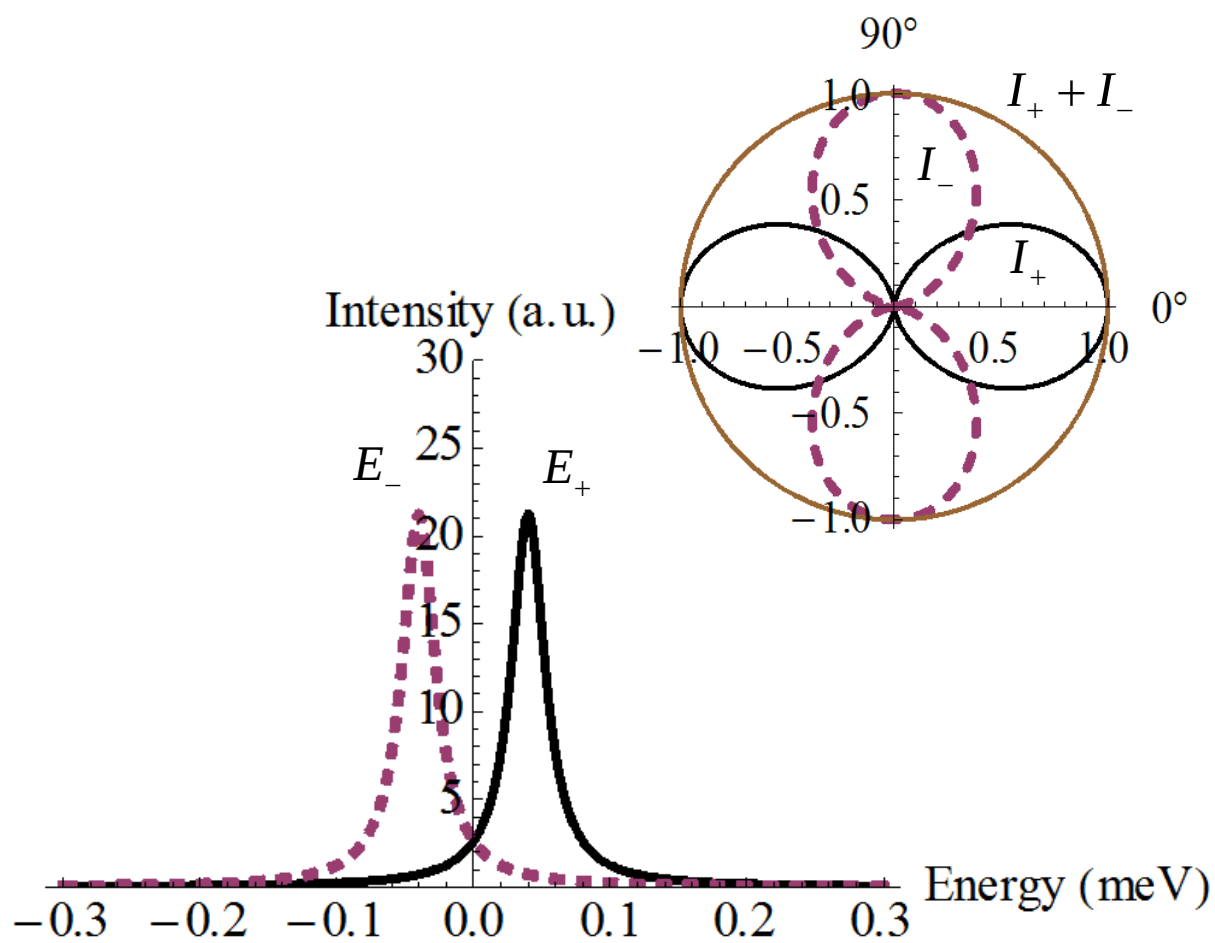
$$I_{+}(\phi) = P_0^2 \cos(\phi - \theta_d)$$

$$I_{-}(\phi) = P_0^2 \sin(\phi - \theta_d) \quad (2.16)$$

由(2.14)式、(2.15)式和(2.16)式，可模擬量子點螢光光譜與偏振方向對螢光強度的影響；假設 $\Delta_0 = 0.1 \text{ meV}$ 、 $\delta_0 = 0.1 \text{ meV}$ 、 $\Delta_1 = 0.08 \text{ meV}$ 、 $\theta_d = 0^\circ$ ，模擬結

果如【圖 2-1】。在電子-電洞交換作用力的影響，重電洞明激子的兩個能態 $|\pm 1\rangle$ 會混合成本徵態 $|\Phi_{\pm}\rangle$ ，而螢光訊號會出現在兩個不同能量處，為 E_{+} 和 E_{-} ，且兩者能量差為 $\Delta_1 = 0.08 \text{ meV}$ ，螢光強度都相同，能量較高的 $|\Phi_{+}\rangle$ 螢光，偏振方向和量子點伸長方向一致，為 $\theta_d = 0^\circ$ 。





【圖 2-1】 量子點激子的光激螢光模擬光譜；右上圖是激子螢光強度偏振圖。

2.3 價電帶混合效應

因量子點受應力的影響，會造成價電帶混合效應 (Valence-band mixing)[10]，也會影響激子能階和螢光偏振。利用 Luttinger-Kohn 模型，可以解出價電帶的能帶結構，尤其是對於重電洞和輕電洞部分。可由此來觀察當重電洞和輕電洞互相影響，對激子螢光的變化。

根據 Luttinger-Kohn 和 Bir-Pikus 的漢米爾頓方程式 [11]；其中 Luttinger-Kohn 是計算關於動量項的，Bir-Pikus 是計算關於應變項的。電洞本徵函數以 $\left|+\frac{3}{2}\right\rangle$ 、 $\left|-\frac{3}{2}\right\rangle$ 、 $\left|+\frac{1}{2}\right\rangle$ 和 $\left|-\frac{1}{2}\right\rangle$ 作為基底，則價電帶受應力作用的漢米爾頓方程式為

$$H_v = - \begin{pmatrix} P+Q & 0 & -S & R \\ 0 & P+Q & R^* & S^* \\ -S^* & R & P-Q & 0 \\ R^* & S & 0 & P-Q \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \left|+\frac{3}{2}\right\rangle \\ \left|-\frac{3}{2}\right\rangle \\ \left|+\frac{1}{2}\right\rangle \\ \left|-\frac{1}{2}\right\rangle \end{pmatrix} \quad \begin{aligned} P &= P_k + P_\varepsilon \\ Q &= Q_k + Q_\varepsilon \\ R &= R_k + R_\varepsilon \\ S &= S_k + S_\varepsilon \end{aligned} \quad (2.17)$$

$$\begin{aligned} P_k &= \left(\frac{\hbar^2}{2m_0} \right) \gamma_1 (k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) & P_\varepsilon &= -a_v (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) \\ Q_k &= \left(\frac{\hbar^2}{2m_0} \right) \gamma_2 (k_x^2 + k_y^2 - 2k_z^2) & Q_\varepsilon &= \frac{-b}{2} (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} - 2\varepsilon_{zz}) \\ R_k &= \left(\frac{\hbar^2}{2m_0} \right) \sqrt{3} [-\gamma_2 (k_x^2 - k_y^2) + 2i\gamma_3 k_x k_y] & R_\varepsilon &= \frac{\sqrt{3}b}{2} (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}) - id\varepsilon_{xy} \\ S_k &= \left(\frac{\hbar^2}{2m_0} \right) 2\sqrt{3}\gamma_3 (k_x^2 - ik_y^2) k_z & S_\varepsilon &= -d (\varepsilon_{xz} - i\varepsilon_{yz}) \end{aligned} \quad (2.18)$$

其中 γ_1 、 γ_2 和 γ_3 為 Luttinger 參數， k_x 、 k_y 和 k_z 為電子波向量， ε_{xx} 、 ε_{yy} 和 ε_{zz} 為量子點受的應變量。 P_k 、 Q_k 、 R_k 和 S_k 項和動能有關， P_ε 、 Q_ε 、 R_ε 和 S_ε 項和應變量有關。因載子大多為在能帶中心 (Zone center) $\vec{k}=0$ ，在此只考慮關

於 Bir-Pikus 項。通常 S 值會小於 R 值，因此可先忽略不計。並設 $P+Q=0$ 、

$P-Q=\Delta_{lh}$ 和 $R_\varepsilon = \rho e^{-2i\theta_s}$ ，則可將(2.17)式簡化為

$$H_{BP} = - \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & \rho e^{-2i\theta_s} \\ 0 & 0 & \rho e^{+2i\theta_s} & 0 \\ 0 & \rho e^{-2i\theta_s} & \Delta_{lh} & 0 \\ \rho e^{+2i\theta_s} & 0 & 0 & \Delta_{lh} \end{pmatrix} \begin{matrix} \left|+\frac{3}{2}\right\rangle \\ \left|-\frac{3}{2}\right\rangle \\ \left|+\frac{1}{2}\right\rangle \\ \left|-\frac{1}{2}\right\rangle \end{matrix} \quad (2.19)$$

Δ_{lh} 為重電洞和輕電洞的能階差，而 θ_s 代表受到較大壓應力的方向， ρ 為應變耦合強度。解出(2.19)式的本徵值和本徵函數，可得雙重簡併態，能量為 $\frac{-\Delta_{lh} + \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}{2}$ 和 $\frac{-\Delta_{lh} - \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}{2}$ 。前者是類重電洞能態(Heavy-hole like states)，後者是類輕電洞能態(Light-hole like states)。而類重電洞本徵能態為

$$|\psi_h^\pm\rangle = \chi_{hh} \left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle - \frac{2\rho e^{\pm 2i\theta_s}}{\Delta_{lh} + \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}} \chi_{lh} \left| \mp \frac{1}{2} \right\rangle \quad (2.20)$$

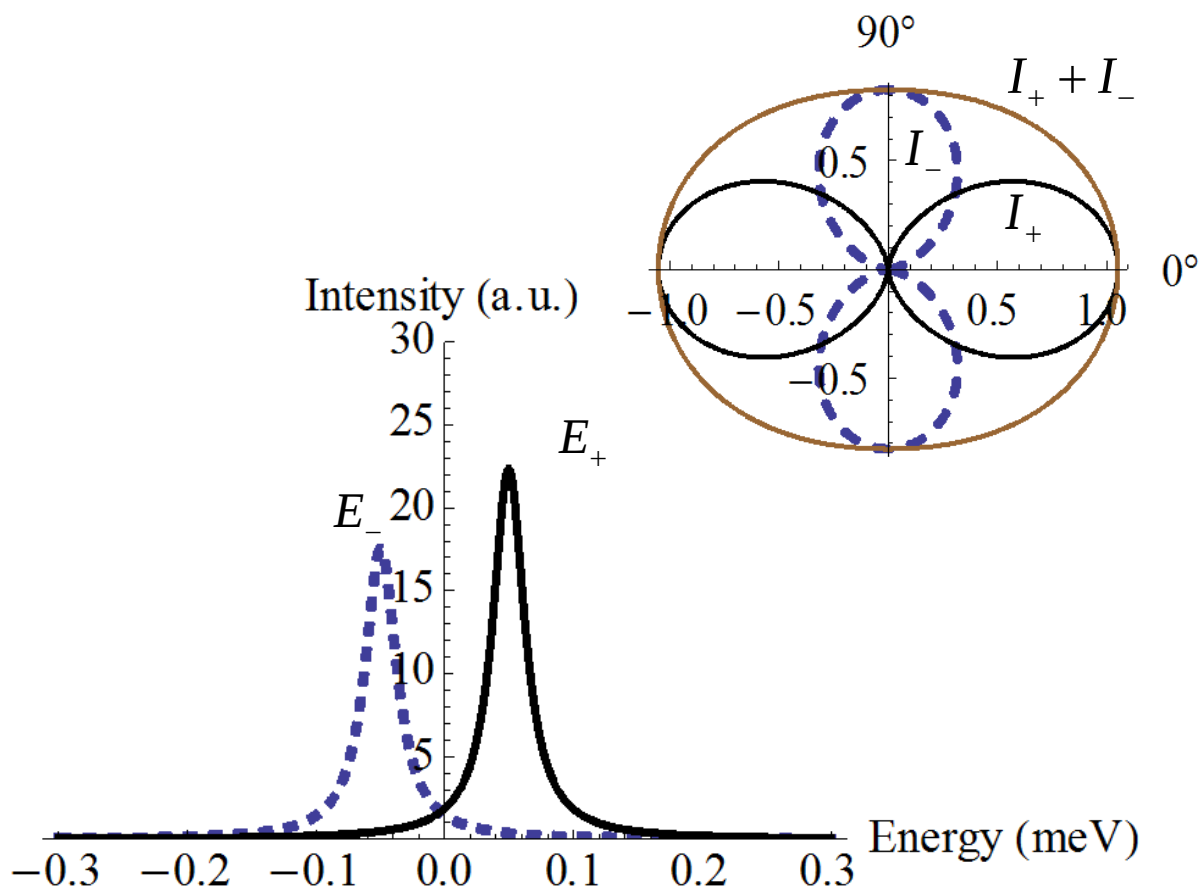
由(2.20)式可知，在價電帶混合效應的作用下，會造成重電洞能態和輕電洞能態的混合。在弱價電帶混合效應近似下，耦合強度會遠小於重電洞和輕電洞間的階差，即 $\rho \ll \Delta_{lh}$ 。此時類重電洞能量 $\frac{-\Delta_{lh} + \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}{2} \approx 0$ ，而類輕電洞能量 $\frac{-\Delta_{lh} - \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}{2} \approx -\Delta_{lh}$ ，(2.20)式的類重電洞本徵能態可簡化為

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

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

$$H_{ex} = \begin{pmatrix} \frac{\delta_0 + \Delta_0}{2} & \frac{\Delta_1}{2} & -\frac{\delta_0}{\sqrt{3}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} & -\rho e^{-2i\theta_s} \\ \frac{\Delta_1}{2} & \frac{\delta_0 + \Delta_0}{2} & -\rho e^{+2i\theta_s} & -\frac{\delta_0}{\sqrt{3}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} \\ -\frac{\delta_0}{\sqrt{3}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} & -\rho e^{-2i\theta_s} & -\Delta_{lh} - \left(\frac{\delta_0}{6} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} + \frac{\Delta_0}{2} \right) & \frac{\Delta'_1}{2} \\ -\rho e^{+2i\theta_s} & -\frac{\delta_0}{\sqrt{3}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} & \frac{\Delta'_1}{2} & -\Delta_{lh} - \left(\frac{\delta_0}{6} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} + \frac{\Delta_0}{2} \right) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\frac{1}{2}; +\frac{3}{2} \\ +\frac{1}{2}; -\frac{3}{2} \\ +\frac{1}{2}; +\frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \end{pmatrix} \quad (2.22)$$

解出(2.22)式的本徵值，即為激子的能態的能量；利用本徵函數可得到激子複合發光的躍遷率，而求得螢光強度，如同(2.16)式。假設 $\Delta_0 = 0$ 、 $\delta_0 = 0.1 \text{ meV}$ 、 $\Delta_1 = 0.08 \text{ meV}$ 、 $\Delta'_1 = \frac{\Delta_1}{3}$ 、 $\Delta_{lh} = 80 \text{ meV}$ 、 $\rho = 22.5 \text{ meV}$ 和 $\frac{I_{lh}}{I_{hh}} = 0.4$ ，且令量子點伸長方向和受應力方向是沿著 0° ，即 $\theta_s = 0^\circ$ 和 $\theta_d = 0^\circ$ 。模擬結果如【圖 2-2】。可由此得知若有價電混合效應存在，將造成激子螢光在不同極化方向時，螢光強度的強弱不同；此和實驗所觀察到情況相同。



【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；右上圖是激子螢光強度偏振圖。

2.4 精細結構分裂和應變量之關係

前面各章節所敘，考慮了激子各種效應而得到的漢米爾頓方程式，可由此計算出重電洞與輕電洞間的能階關係。在無外加磁場情況下，只有類重電洞明激子會發出螢光；而類重電洞明激子擁有兩種本徵態，本徵態間各自有著不同的偏振方向。且兩種本徵態的能量差有 $10 \sim 100 \mu\text{eV}$ ，即為激子的精細結構分裂。

根據前節的漢米爾頓方程式，在弱價電帶混合效應近似下，可利用微擾理論，將輕電洞的影響當作微擾影響

$$H'_{mn} = H_{mn} + \sum_{\alpha \in lh} \frac{H_{m\alpha} H_{\alpha n}}{E_{hh} - H_{\alpha\alpha}} \quad (2.23)$$

並以類重電洞明激子本徵函數 $|\downarrow; \psi_h^+\rangle$ 和 $|\uparrow; \psi_h^-\rangle$ 當作基底，近似過後的漢米爾頓方程式為

$$H_{ex} \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0 + \Delta_0 & \tilde{\Delta}_1 + 4\delta_0 \tilde{\gamma} \\ \tilde{\Delta}_1^* + 4\delta_0^* \tilde{\gamma}^* & \delta_0 + \Delta_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |\downarrow; \psi_h^+\rangle \\ |\uparrow; \psi_h^-\rangle \end{pmatrix} \quad (2.24)$$

$$\text{其中 } \tilde{\gamma} \equiv \frac{\rho e^{-2i\theta_s}}{\sqrt{3}\Delta_{lh}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} = \gamma e^{-2i\theta_s}$$

解出(2.24)式，可以得到類重電洞明激子的本徵值，即為激子的能量。若令量子點伸長方向和受應力方向皆是沿著 0° ，即 $\theta_s = 0^\circ$ 和 $\theta_d = 0^\circ$ ，則激子的能量為

$$E_{\pm} = \frac{(\delta_0 + \Delta_0) \pm \Delta_1}{2} \pm 2\delta_0 \gamma \quad (2.25)$$

而激子複合發光躍遷率的計算，得到的螢光強度 $I_{\pm}$ 為

$$I_+(\phi) = P_0^2 (1 + \gamma)^2$$

$$I_-(\phi) = P_0^2 (1 - \gamma)^2$$

而兩個方向的偏振螢光強度有所差異，此稱偏振不對稱性(Polarization anisotropy)，定義為

$$P_L \equiv \left| \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} \right| = \frac{2\gamma}{1 + \gamma^2} \quad (2.26)$$

激子的精細結構分裂，即為兩明激子的能量差值，定義為

$$\Delta_{FSS} \equiv E_+ - E_- = \Delta_1 + 4\delta_0\gamma = \Delta_1 + \frac{4\delta_0\rho}{\sqrt{3}\Delta_{lh}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} \quad (2.27)$$

其中 δ_0 和 Δ_1 分別是電子-電洞交換作用中，明激子和暗激子能量差，以及兩個明激子間能量差； Δ_{lh} 為重電洞和輕電洞的能階差； I_{hl} 和 I_{hh} 是輕電洞或重電洞間的重疊積分； ρ 是代表了價電帶混合效應的程度。

而(2.27)式的 ρ 項和激子精細結構分裂成正比。在前面章節計算價電帶結構時，使用了 Luttinger-Kohn 和 Bir-Pikus 的漢米爾頓方程式；其中設 $R = \rho e^{-2i\theta_s}$ ，又令 $\theta_s = 0^\circ$ ，因此可得到 ρ 項為 $\rho = R = R_\varepsilon + R_k$

$$R_\varepsilon = \frac{\sqrt{3}b}{2} (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}) - id\varepsilon_{xy}$$

$$R_k = \left(\frac{\hbar^2}{2m_0} \right) \sqrt{3} \left[-\gamma_2 (k_x^2 - k_y^2) + 2i\gamma_3 k_x k_y \right]$$

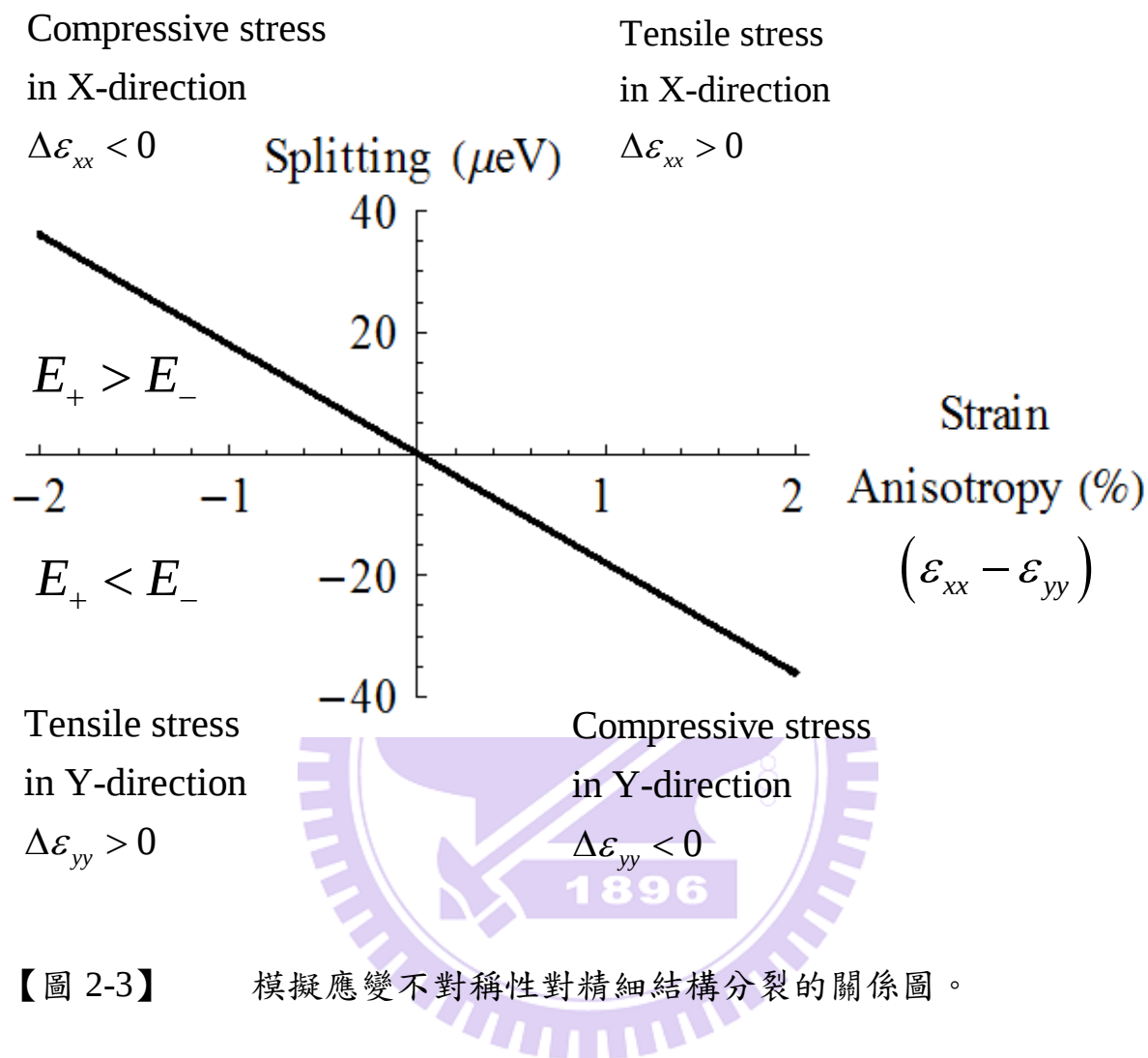
因載子大多為在能帶中心(Zone center) $\vec{k} = 0$ ，在此只考慮關於 Bir-Pikus 的應變項 R_ε 。其中， ε_{xx} 和 ε_{yy} 分別是對 x 和 y 方向的應變量； ε_{xy} 是在 xy 平面上的剪應變量； b 和 d 是材料的形變位能(Deformation potential)。若忽略掉剪應變量，則 ρ 項為

$$\rho = \frac{\sqrt{3}b}{2}(\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}) \quad (2.28)$$

將 ρ 項代回(2.27)式可得激子的精細結構分裂為

$$\Delta_{FSS} \equiv E_+ - E_- = \Delta_1 + \frac{2\delta_0 b}{\Delta_{lh}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}}(\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}) \quad (2.29)$$

$\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}$ 為量子點在 x 和 y 方向應變量的差值，定義為應變不對稱性(Strain anisotropy)；將會對精細結構分裂有著很大的影響。假設能對量子點的 x 和 y 方向外加應力，來改變量子點應變不對稱性。令 $\delta_0 = 0.2 \text{ meV}$ 、 $\Delta_1 = 0$ 、 $\Delta_{lh} = 80 \text{ meV}$ 、 $\frac{I_{lh}}{I_{hh}} = 0.4$ 、 $b = -1.8 \text{ eV}$ ；且由 2.3 小節的模擬可得知， E_+ 和 E_- 的偏振分別是對應 x 和 y 方向。則模擬應變不對稱性對精細結構分裂 Δ_{FSS} 值的關係如【圖 2-3】。可觀察到當 x 方向有壓縮應力或 y 方向有伸張應力時， Δ_{FSS} 值將變大；反之當 x 方向有伸張應力或 y 方向有壓縮應力時， Δ_{FSS} 值將往負的方向變大。若初始時激子的精細結構就是 x 方向能量較 y 方向的大，即 $E_+ > E_-$ 的狀態，則應該要外加應力讓 x 方向伸張或讓 y 方向壓縮。反之是 $E_+ < E_-$ 的狀態時，應要外加應力讓 x 方向壓縮或讓 y 方向伸張。看激子在哪個方向的能量較低，就對此方向施加壓縮應力。



【圖 2-3】 模擬應變不對稱性對精細結構分裂的關係圖。

第三章 樣品與實驗裝置

3.1 樣品結構與製備

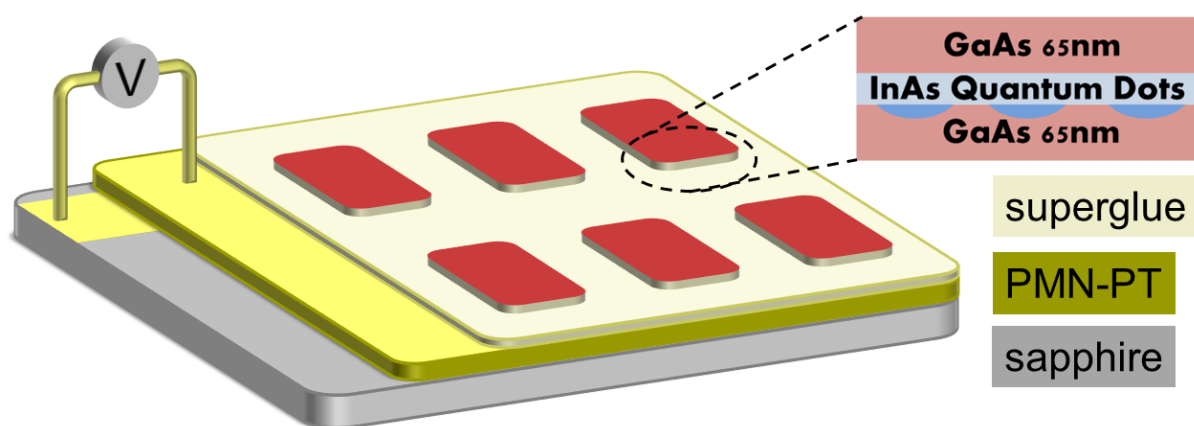
本論文所使用的樣品為砷化銦(InAs)量子點，是由交通大學電子工程學系林聖迪教授所提供。樣品採用分子束磊晶法(MBE)成長，其結構如【圖 3-1】所示。在樣品的成長過程中，先在砷化鎵(GaAs)基板成長緩衝層，可使磊晶的表面層平坦且減少基板表面的缺陷。接著成長 850 nm 的砷化鋁鎵當作犧牲層，再成長 65 nm 的砷化鎵。而後利用 Stranski-Krastanow 成長法成長一層砷化銦量子點，最後在量子點上覆蓋一層 65 nm 的砷化鎵當覆蓋層。



【圖 3-1】 砷化銦量子點樣品結構圖。

實驗時必須使量子點能夠被施加額外的應力，我們使用了壓電材料。當壓電材料被施加電場時，表面將會伸張或壓縮，是為壓電效應。因此將帶有量子點的樣品貼在壓電材料上。

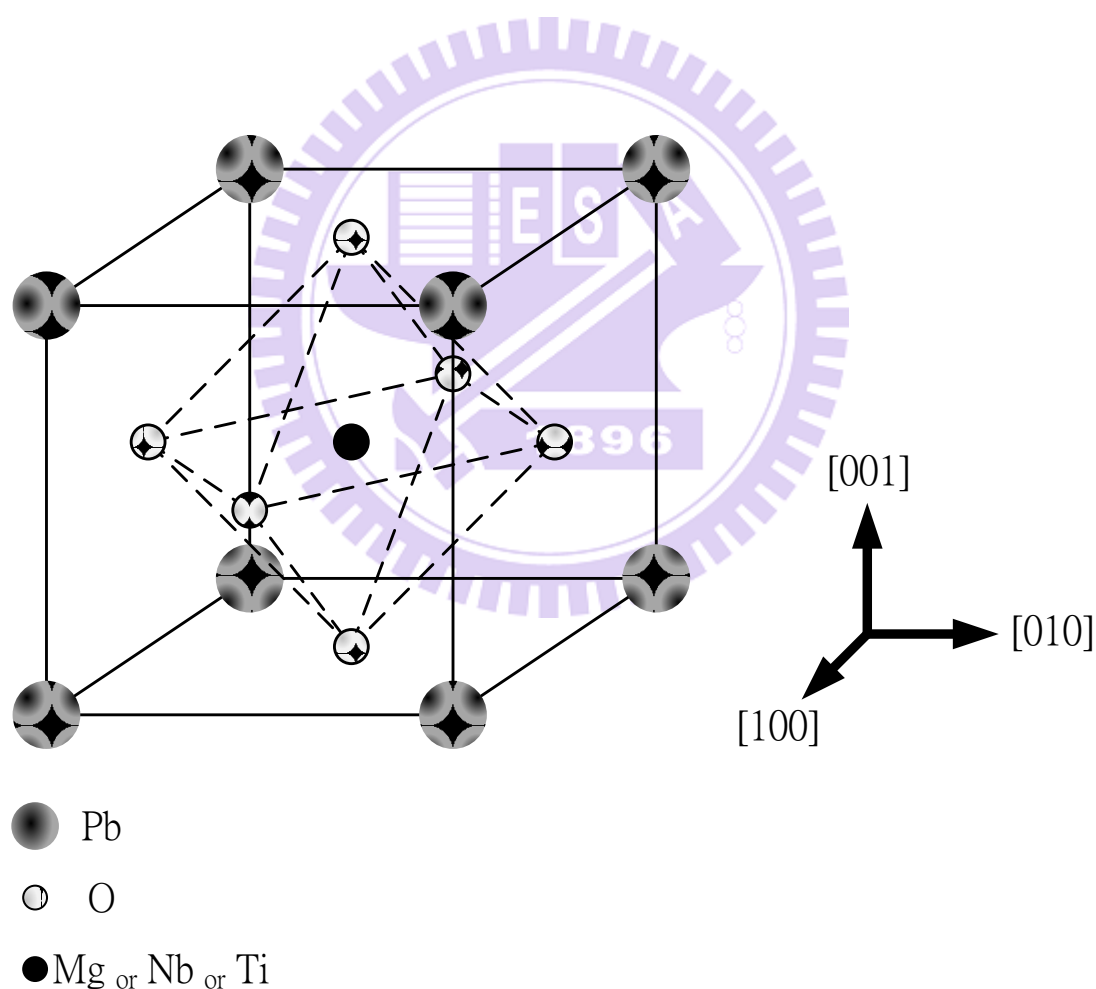
為了方便辨識量子點的位置，我們將樣品切成許多方型圖案。首先，在量子點樣品塗上光阻層；利用曝光顯影等方式，在光阻上曝光成數塊 $15\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$ 的方型圖案，利用光阻當作往下蝕刻的遮罩。再用濕式蝕刻法，蝕刻掉未受光阻保護的砷化鎵層；使樣品被切成數塊方型圖案。再用氫氟酸 (HF) 來蝕刻掉所有砷化鎵層；使量子點樣品能落於砷化鎵基板。再將壓電材料 PMN-PT，以旋轉塗佈方式塗上一層瞬間接著劑 (Superglue)，把樣品倒過來覆蓋於 PMN-PT 上，便可將量子點樣品貼在 PMN-PT 上頭。接著再將 PMN-PT 上下兩端黏上電極，即可產生電場使壓電材料壓縮或伸張。



【圖 3-2】可外加應力之砷化鎵量子點元件結構圖。

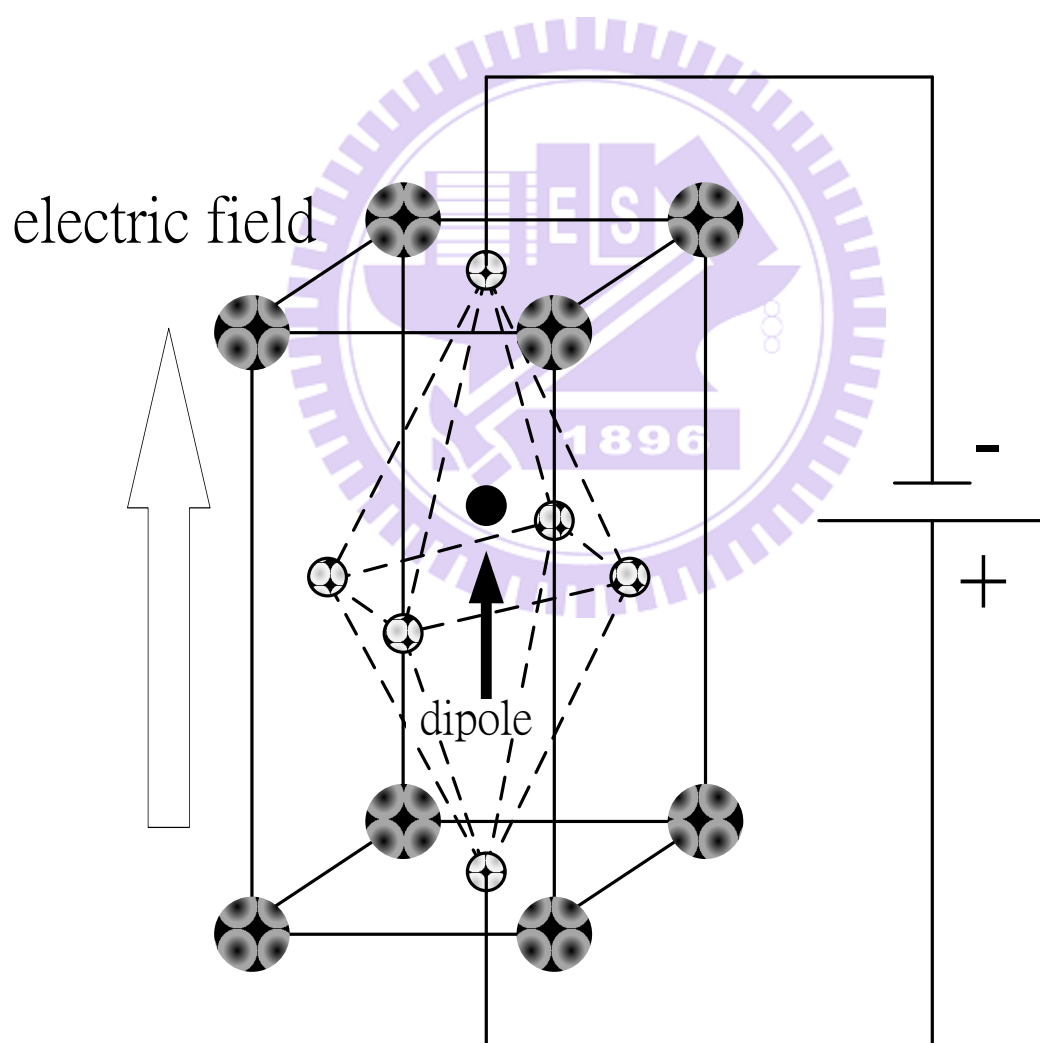
3.2 壓電材料 PMN-PT 的介紹

本論文所使用的壓電材料為鈮鎂酸鉛－鈦酸鉛 $[\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3]_{0.72}-[\text{PbTiO}_3]_{0.28}$ ，以下簡稱 PMN-PT。是人工壓電陶瓷的一種，為 ABO_3 型化合物，又稱鈣鈦礦(Perovskite)結構，如【圖 3-3】。PMN-PT 是指 $1/3 \text{PbMgO}_3$ 和 $2/3 \text{PbNbO}_3$ 的固溶相所構成的雙成分系統，再與 PbTiO_3 依比例混合。本論文所使用的比例是 72 : 28。



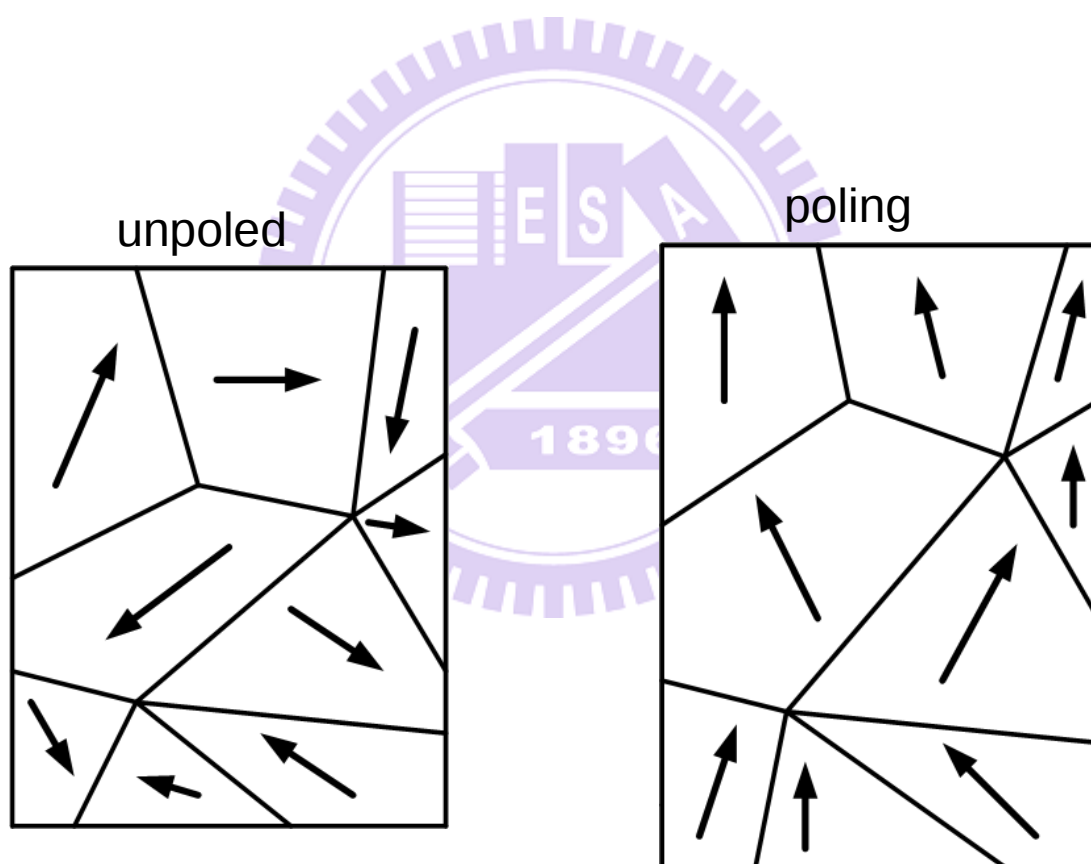
【圖 3-3】 ABO_3 型化合物結構示意圖。

當壓電材料受到外界應力作用後，晶體結構會發生形變，而產生電偶極矩(Electric dipole moment)，使相應晶體表面產生極化電荷；也可由電表來量得材料的電位差。若施加相反的應力，則電位差方向變為反向。反之，若是將壓電材料施加電場，材料本身的電偶極矩將會變大，導致材料被拉長，如【圖 3-4】。這種使機械能和動能互相轉換的特徵，即為壓電效應[15]。



【圖 3-4】 壓電材料形變方式示意圖。

壓電材料在自然狀態下，內部的電偶極矩會有區域性的方向。這些微小的區域隨機分布於塊材內，整體的淨值為零。但若在高溫狀態下施加很大的電場，即可使內部的電偶極矩大致都轉向電場方向。並且在溫度降低、又不再施加電場時，電偶極矩也能保持著跟之前電場同樣的方向，此稱為極化(Poling)；如【圖 3-5】。如此一來，將能使壓電材料內產生內建電偶極矩。



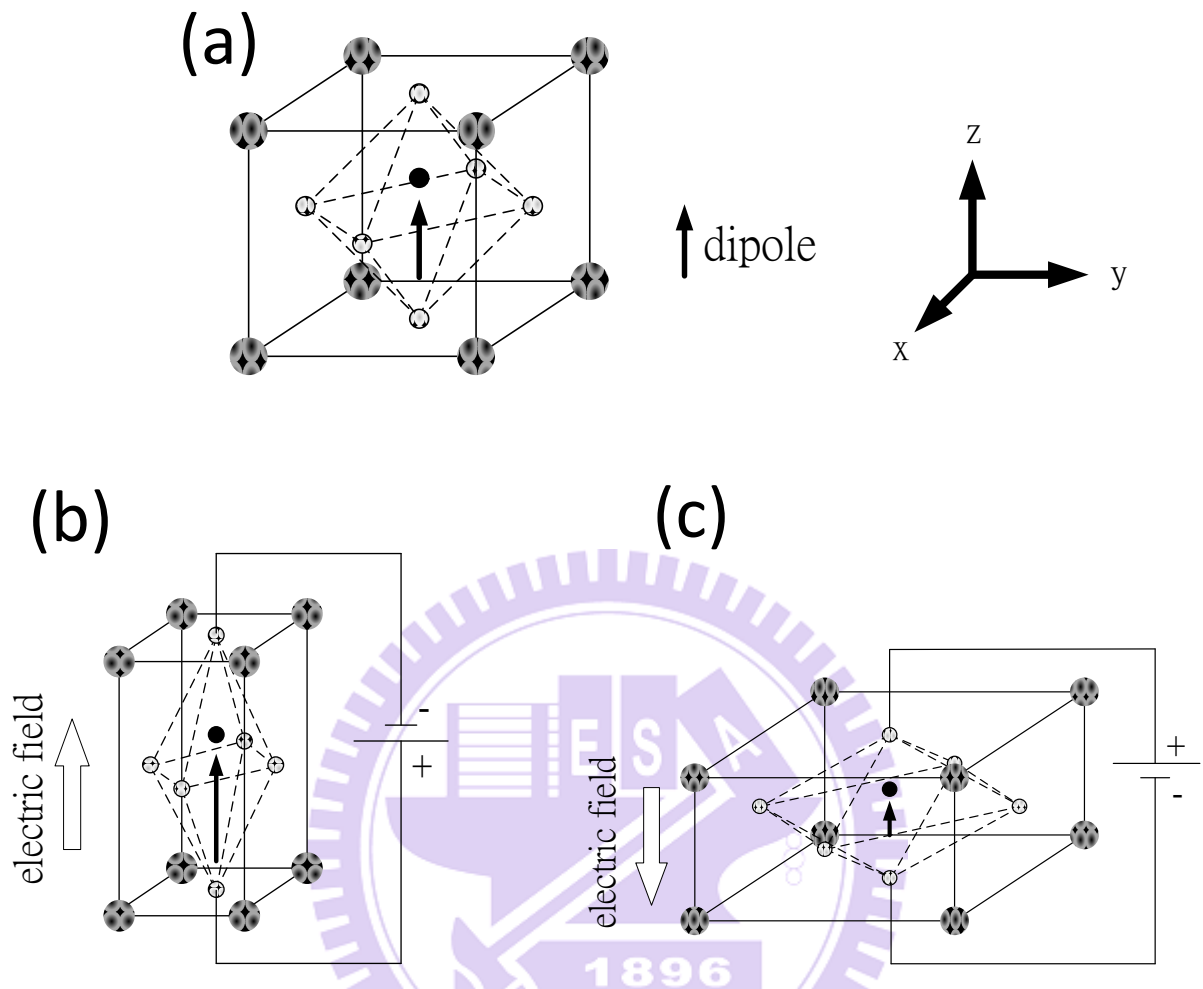
【圖 3-5】 壓電材料內電偶極矩分布示意圖。

當所施加的電場和內建電偶極矩方向同向時，電偶極矩將隨著電壓而變大，而材料相應電場的方向將會被拉長，並且垂直此方向的平面會受到壓縮的應力；定義所加的電壓為順向偏壓。反之，當電場為反向時，電偶極矩將隨著電壓而變小，材料相應電場的方向將會被壓縮，並且垂直此方向的平面會受到伸張的應力；定義所加的電壓為逆向偏壓。如【圖 3-6】。

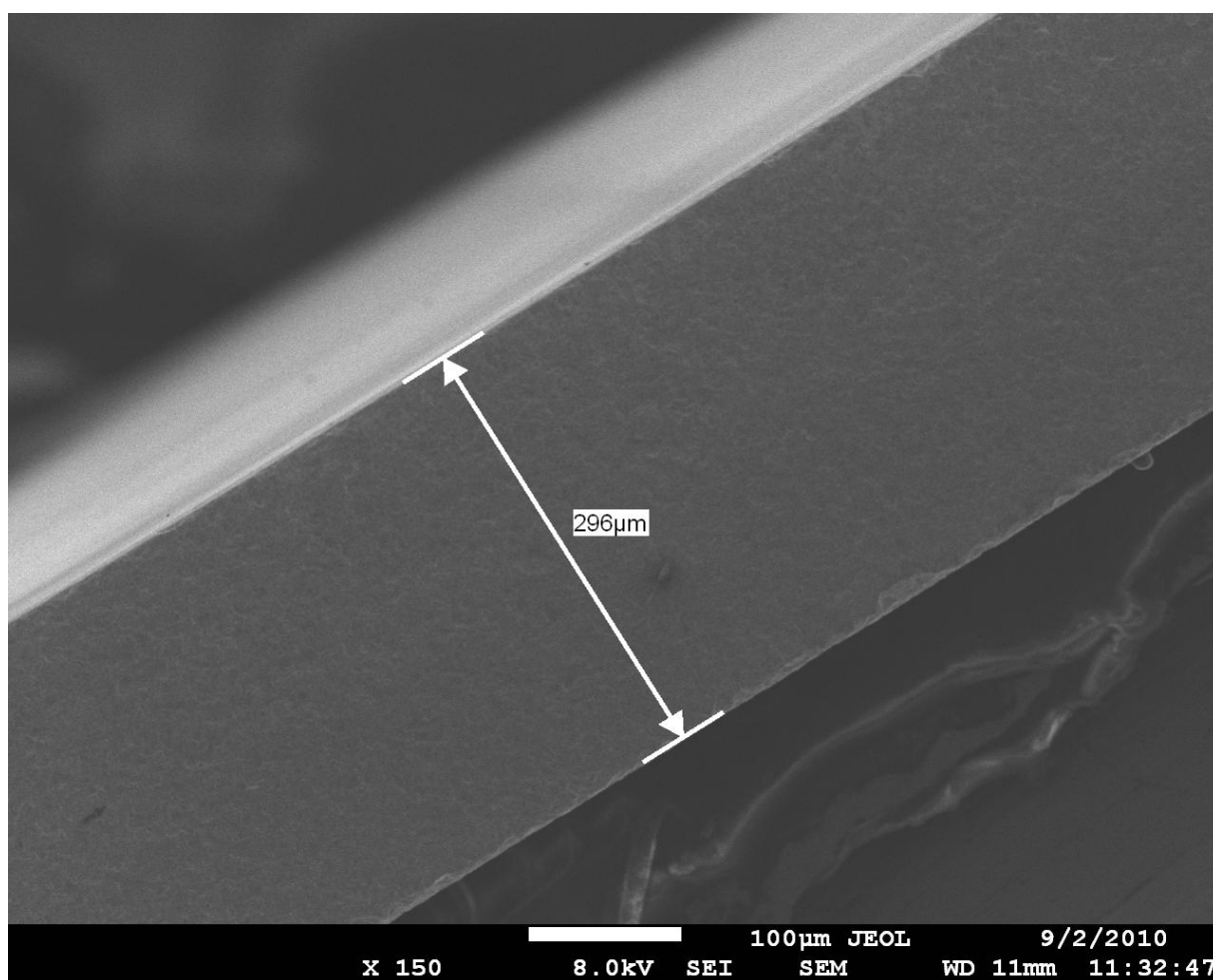
壓電材料所產生的應變量，和所施加的電場成正比，其關係式為

$$\varepsilon_{\alpha} = E_z d_{\alpha} \quad (\alpha = x, y, z) \quad (3.1)$$

其中， ε_{α} 代表各個方向的應變量； E_z 代表施加在 z 方向的電場大小； d_{α} 代表各個方向的壓電常數(Piezoelectric constants)。而 z 方向的電場大小，可由施加在壓電材料上的電位差，再除以材料的厚度來求得。本論文所使用的 PMN-PT 厚度如【圖 3-7】，約為 300 μm 。假設材料在 x 方向的壓電常數是 -1000 pC/N，且對材料加 300V 的偏壓，代表所施加電場為 10 kV/cm，則材料在 x 方向應變量為電場和壓電常數的乘積，為 -1 ‰；也就是原本晶體在 x 方向的長度是 ℓ ，施加電場後長度則變成 $\ell \times \left(1 - \frac{1}{1000}\right)$ 。而若是在 10 k 的環境底下，應變大小將只剩下室溫的四分之一[16]。

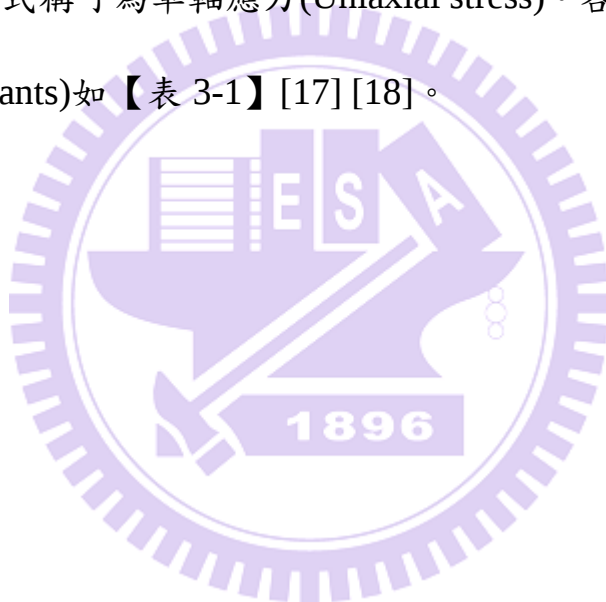


【圖 3-6】 壓電材料在不同偏壓時的形變方式示意圖。圖(a)是極化過後的晶體。圖(b)是施加順向偏壓，晶體相應電場方向被伸長，但在側邊是被壓縮。圖(c)是施加逆向偏壓，晶體相應電場方向被壓縮，但在側邊是被伸張。



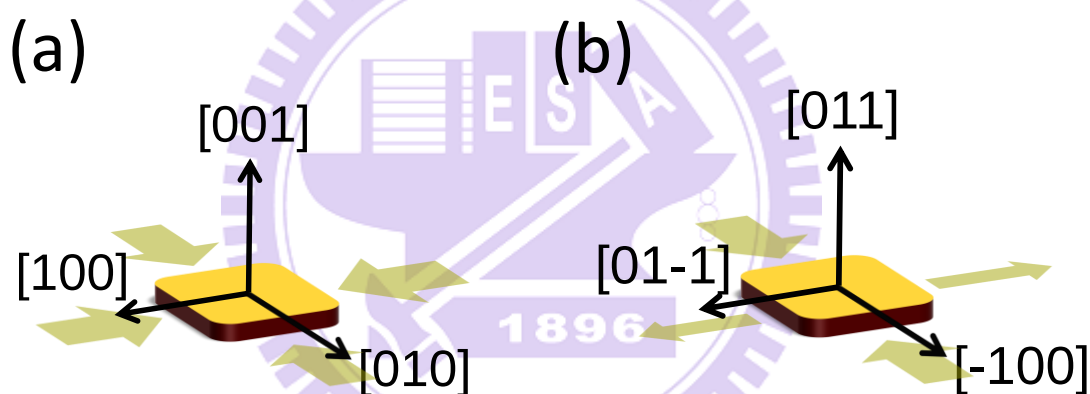
【圖 3-7】 本論文所使用的 PMN-PT，利用掃描式電子顯微鏡來觀察材料的厚度。

對不同的 PMN-PT 晶面施加電場的話，材料的應變量也會有所不同。如【圖 3-8】。本論文所使用的是晶面方向[001]和[011]的 PMN-PT。對於 PMN-PT[001]，當施加順向偏壓在[001]方向，晶體除了會在[001]伸長外，還會在[100]和[010]受到壓縮的應力；這種應力方式稱呼為雙軸應力(Biaxial stress)。對於 PMN-PT[011]，當施加順向偏壓在[011]方向，晶體除了會在[011]伸長外，在[-100]會有個較大的壓縮應力，以及在[01-1]會有個較小的伸張應力；這種應力方式稱呼為單軸應力(Uniaxial stress)。各個方向的壓電常數(Piezoelectric constants)如【表 3-1】[17][18]。



【表 3-1】 晶面方向[001]和[011]的 PMN-0.28PT，所對應到各個方向的壓電常數。

晶面方向	d_{31} (pC/N)	d_{32} (pC/N)	d_{33} (pC/N)
PMN-0.28PT [001]	-1000	-1000	2000
PMN-0.28PT [011]	723	-1761	1766



【圖 3-8】 不同晶面的 PMN-PT 在順向偏壓時，受應力方向示意圖。
圖(a)和(b)分別是對應到晶面方向[001]和[011]。

3.3 顯微光激發螢光量測系統

本論文是使用顯微光激發螢光光譜量測系統，來量測量子點的譜線。系統架設如【圖 3-9】。實驗時會將量子點樣品置於低溫恆溫腔(Cryostat)內，使用液態氦將其降至 5~10 k 的低溫當中；以消除聲子的干擾，才能量得量子點的訊號。由於樣品是成長於砷化鎵上的砷化銦量子點，所使用的激發光源能量，必須大於砷化鎵的能隙(Band gap)，才能激發出樣品中的電子電洞對，並且有機會被量子點捕捉到而形成激子。低溫下砷化鎵的能隙約為 1.519 eV，所對應到光子的波長大約是 816 nm；所以我們選擇了波長為 632.8 nm 的氦氖雷射，來當作實驗的激發光源。

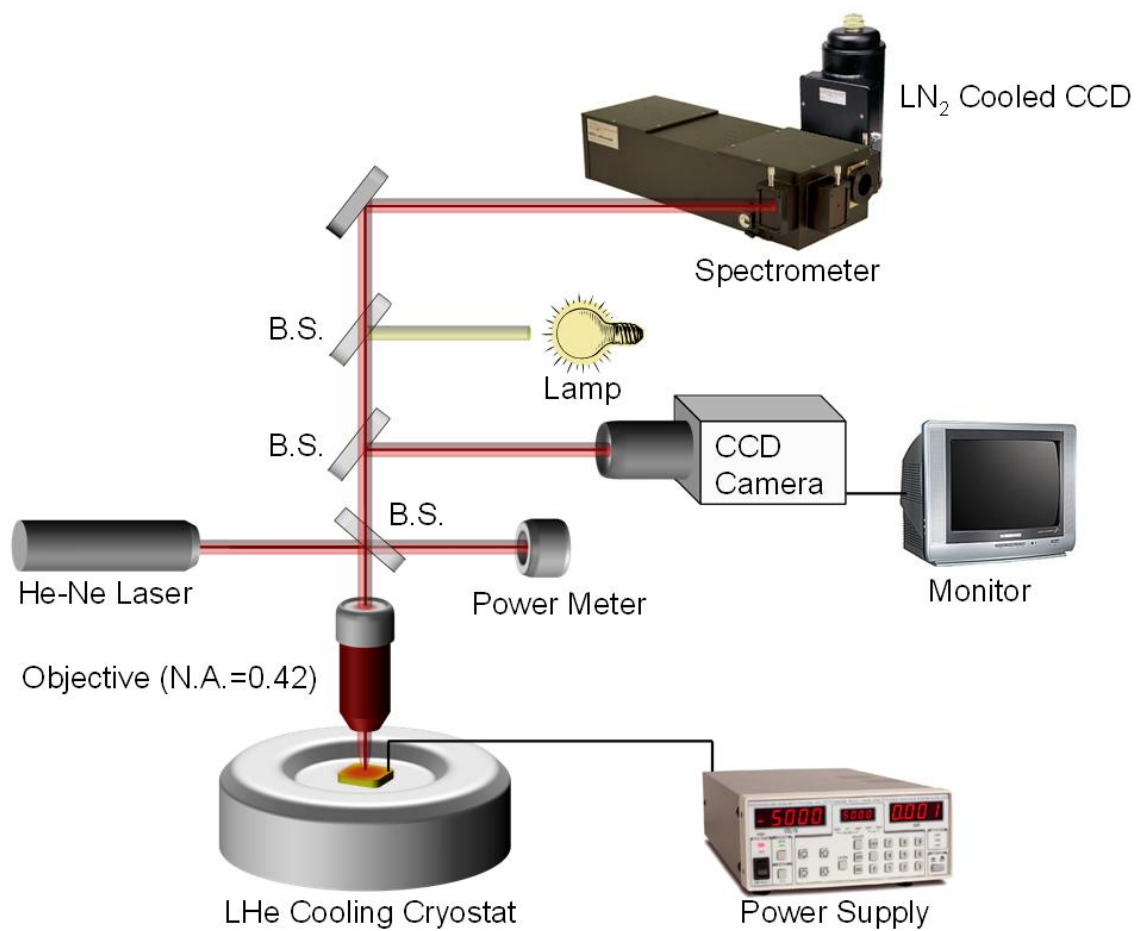
藉由反射鏡和 50 倍物鏡，將氦氖雷射聚焦於樣品表面；位在價電帶的電子吸收了光子能量，而躍遷到傳導帶上，並留下一個電洞。高能量的電子和電洞，會因晶格碰撞而釋放能量，最後分別掉到傳導帶底部與價電帶頂部，然後兩者複合而放出光子。是為光激螢光。利用反射鏡將螢光引入光譜儀中進行分光，而後由電荷耦合元件(CCD)來偵測不同波長的螢光強度；再傳送到電腦中便能描繪出螢光光譜了。便可在不破壞樣品的情況下，來研究半導體的能帶結構。

量測系統中還包含了顯微成像裝置。所製備的樣品上，有著許多帶有量子點的方型圖案，大小是 $15\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$ ；為了確定雷射是正在激發哪一個圖案的量子點，必須即時觀察雷射的激發位置。利用分光鏡(Beam splitting,

B.S.)將白光(Lamp)引入物鏡中，聚焦照在樣品上，樣品反射出的白光將由另一面分光鏡使其引入 CCD 攝影機當中，再透過螢幕(Monitor)可成現出樣品表面的影像、和雷射聚焦的位置。若是想要改變雷射激發位置，則一邊觀察螢幕，一邊調整樣品底下的移動平台。由於成像所用的分光鏡是可動式，想要量測光譜時再移開即可。

在實驗前必須先對元件施加電壓，將壓電材料 PMN-PT 給極化。使用電源供應器(Power supply)，把 PMN-PT 的上端當作接地端，在下端輸入正電壓，如此一來將產生向上的電場，也成為了極化方向。爾後就將正電壓當作順向偏壓，負電壓當作逆向偏壓。為了使樣品即使處在真空及低溫環境下，也能被施加電場，使用了真空導入端子(Feedthrough)，讓電源供應器的電壓能輸入至樣品上。

若需分析光激螢光的偏振性，則在螢光訊號進入光譜儀前，架設二分之一波片與偏振晶體。藉由改變波片光軸和偏振晶體的夾角，可使特定偏振的螢光能通過而進入光譜儀內。



【圖 3-9】

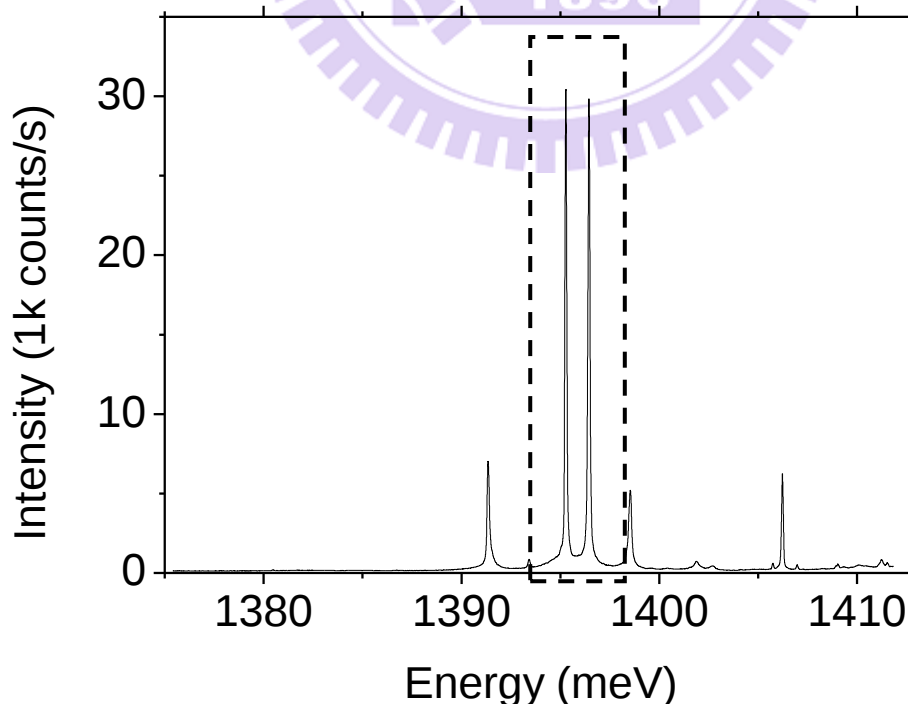
顯微光激螢光量測系統實驗裝置圖。

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】。圖上可觀察到一些極細的譜線，這些譜線半寬大多小於 $100 \mu\text{eV}$ 。且譜線的強度對雷射的聚焦位置非常敏感，因此可判斷這些譜線為量子點螢光訊號。

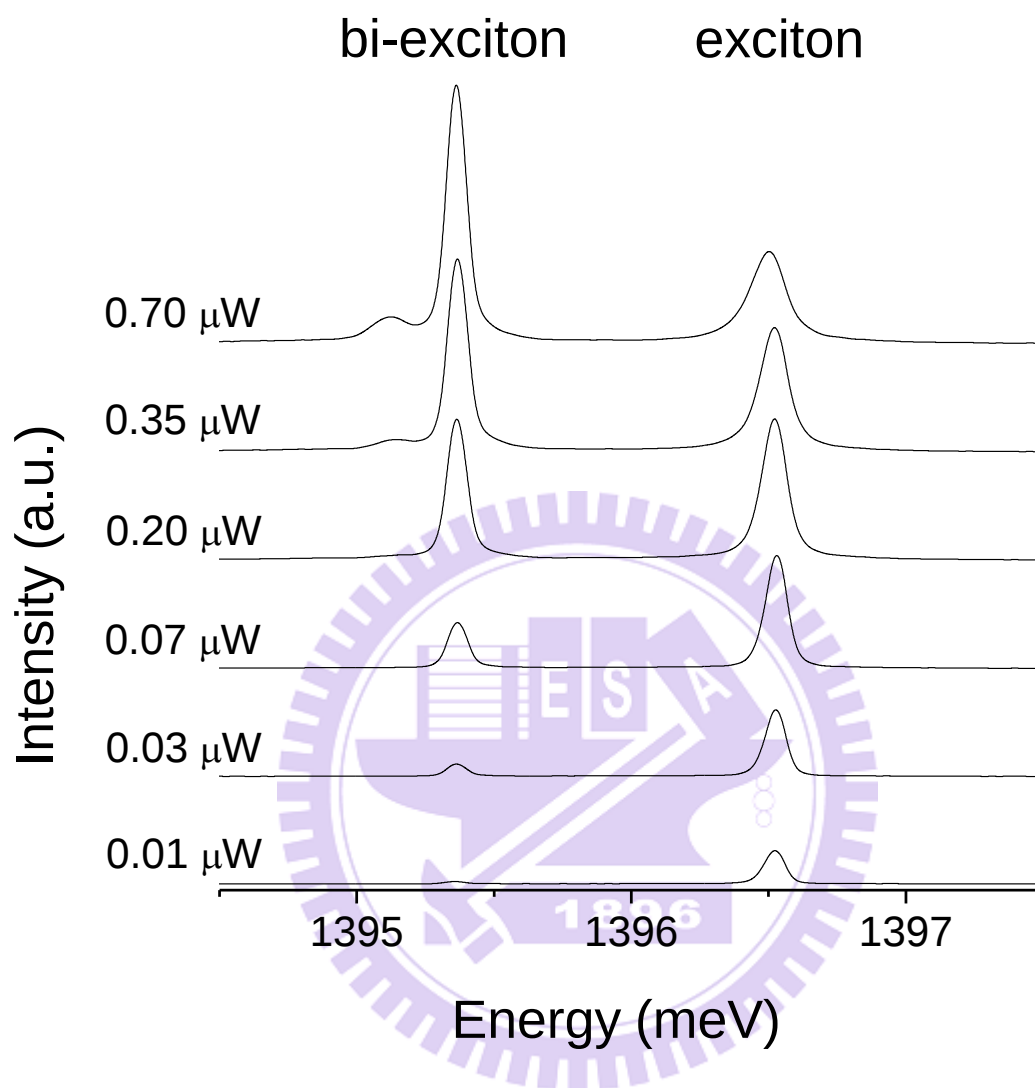
元件製備時，是將帶有量子點樣品的部分切成許多方型圖案，以使用來訂量子點的位置。每個 $15 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ 方形圖案上大約有數十至數百不等個量子點。利用雷射激發在不同的圖案上，再經由譜線分析，來判斷圖案上是否有量子點存在、或是量子點的數量、或是激子的能量大小與螢光強度。目標是希望找到螢光強度較強的激子訊號，並且附近沒有其它量子點的激子訊號在，以免對譜線分析造成影響。



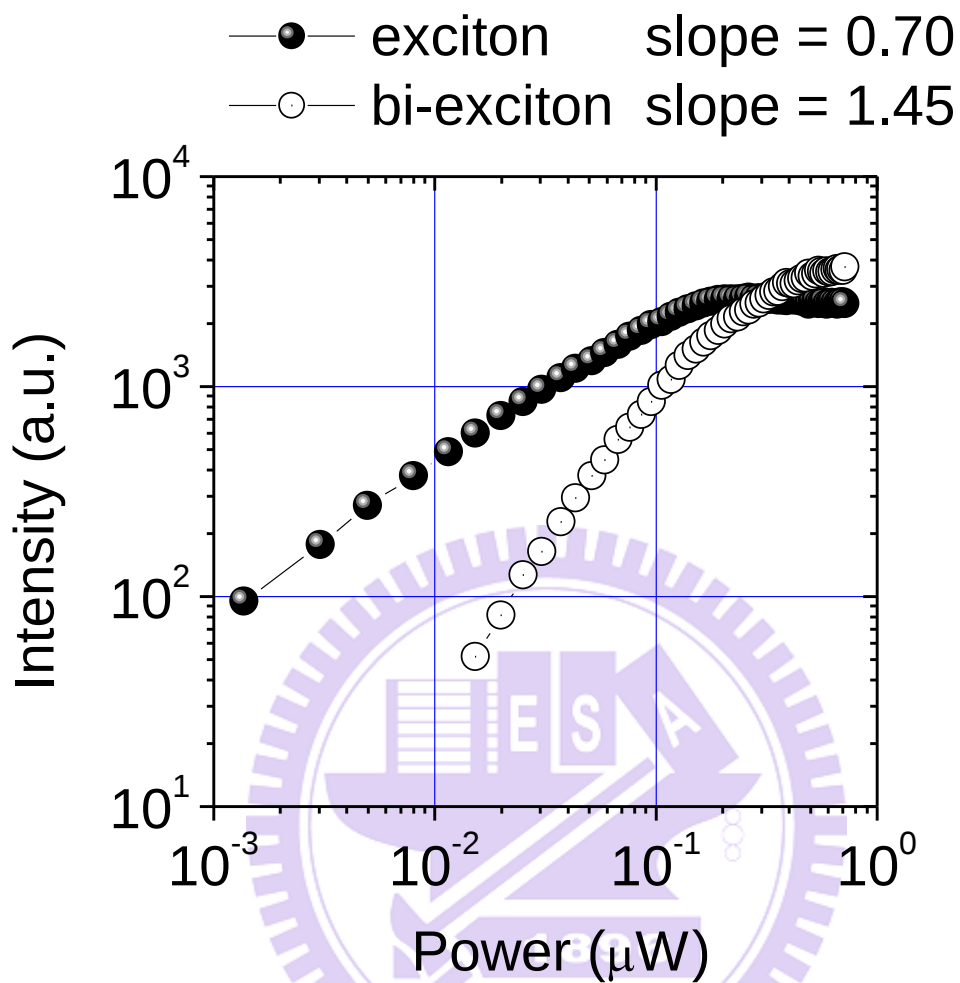
【圖 4-1】 量子點顯微光激螢光光譜圖。

當雷射激發功率增強，樣品中單位時間內所產生的電子電洞對會隨著增加，並提高了量子點捕捉到它的機率；電子電洞對將會在量子點內形成激子。若在低功率激發，量子點捕捉到的機率較低；再捉到下一個電子電洞對之前，激子已經先進行輻射複合而放出光子，是為激子訊號。若提高激發功率，量子點捕捉到的機率升高；再激子放出光子前，能容易捕捉到下一個電子電洞對，而激子會受到後來填入電子或電洞的庫倫作用力影響，進行輻射複合放出了不同能量的光子，是為雙激子訊號。

改變不同雷射功率來激發量子點的實驗，如【圖 4-2】。在雷射激發功率較低時，量子點訊號只在能量約 1396.5 meV 處有一根譜線，可判斷此訊號是來自激子。在雷射激發功率較高時，量子點訊號多了一根出現在能量約 1395.5 meV 處的譜線，可判斷此訊號是來自雙激子。



【圖 4-2】 不同雷射激發功率下，量子點的顯微光激螢光光譜圖。



【圖 4-3】雷射激發功率對螢光強度的關係圖。

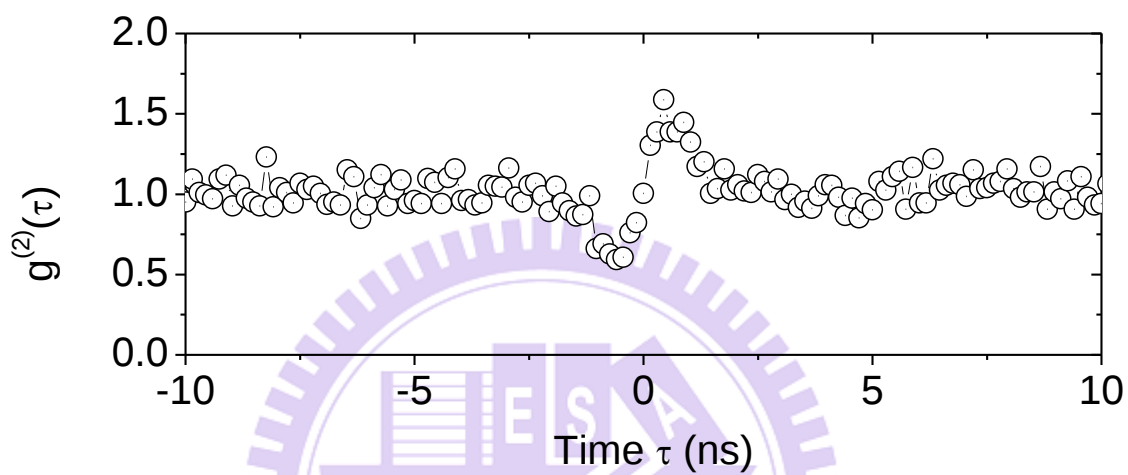
而激子和雙激子的螢光強度，與雷射激發功率的大小有著密切關係。在此將雷射激發功率對螢光強度取對數作圖，如【圖 4-3】。由作圖所得到的斜率大小，可觀察到激子螢光強度和雷射激發功率呈 0.7 次方的關係；而雙激子的斜率是為激子的兩倍。因此可證實能量 1396.5 meV 處是激子訊號，能量 1395.5 meV 處是雙激子訊號。

前述已經確認所量測到的譜線的確是激子和雙激子訊號，再來需驗證兩者是否來自於同一顆量子點。典型的量子點系統，當量子點中有兩對電子電洞對同時存在的話，其中一對會先進行輻射複合，發出的螢光為雙激子訊號；剩下的一對不久後也會進行輻射複合，發出的螢光為激子訊號。也就是量子點系統有著先發出雙激子訊號、再發出激子訊號這樣的關係存在。因此將利用 Hanbury-Brown and Twiss (HBT)干涉儀，來確認實驗中所量得的激子和雙激子訊號，是否有著這樣的相干性(Correlation)存在。所使用的激發光緣是氦氖雷射，並用兩台雪崩式光電二極體(Avalanche photodiode)來當作光偵測器。

調整雷射激發功率，讓激子和雙激子有一樣強的螢光強度。代表雷射激發功率夠高，讓量子點每次都能捕捉到兩對電子電洞對而放出激子和雙激子訊號。實驗是將雙激子訊號，當作時間開始計時的觸發；將激子訊號，當作時間停止計時的觸發。例如，當光偵測器量到雙激子訊號，則時間將開始計時，直到另一台光偵測器量到激子訊號後，時間才停止計時；若是這段時間有 5 ns，則電腦將在 5 ns 處紀錄這個事件發生一次。時間為正值的事件，是代表樣品先發出雙激子訊號、再發出激子訊號；時間為負值的事件則是順序相反，先激子、再雙激子。

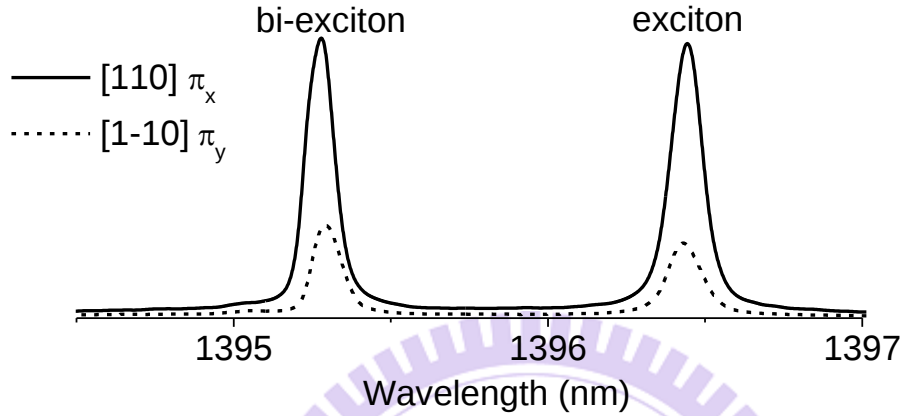
實驗結果如【圖 4-4】，可看得出時間為正值的事件發生次數較多，而時間為負值的事件不易發生。代表樣品是以先發出雙激子訊號、再發出激子

訊號的放光過程為主；符合典型的量子點狀態。由此證明所量測到的激子和雙激子訊號是來自於同一顆量子點。



【圖 4-4】 激子和雙激子的相干性量測結果。

為了分析單量子點激子和雙激子的精細結構分裂，與螢光偏極化方向；使用了二分之一波片和偏振晶體來量測各種偏振方向的螢光。如【圖 4-5】。



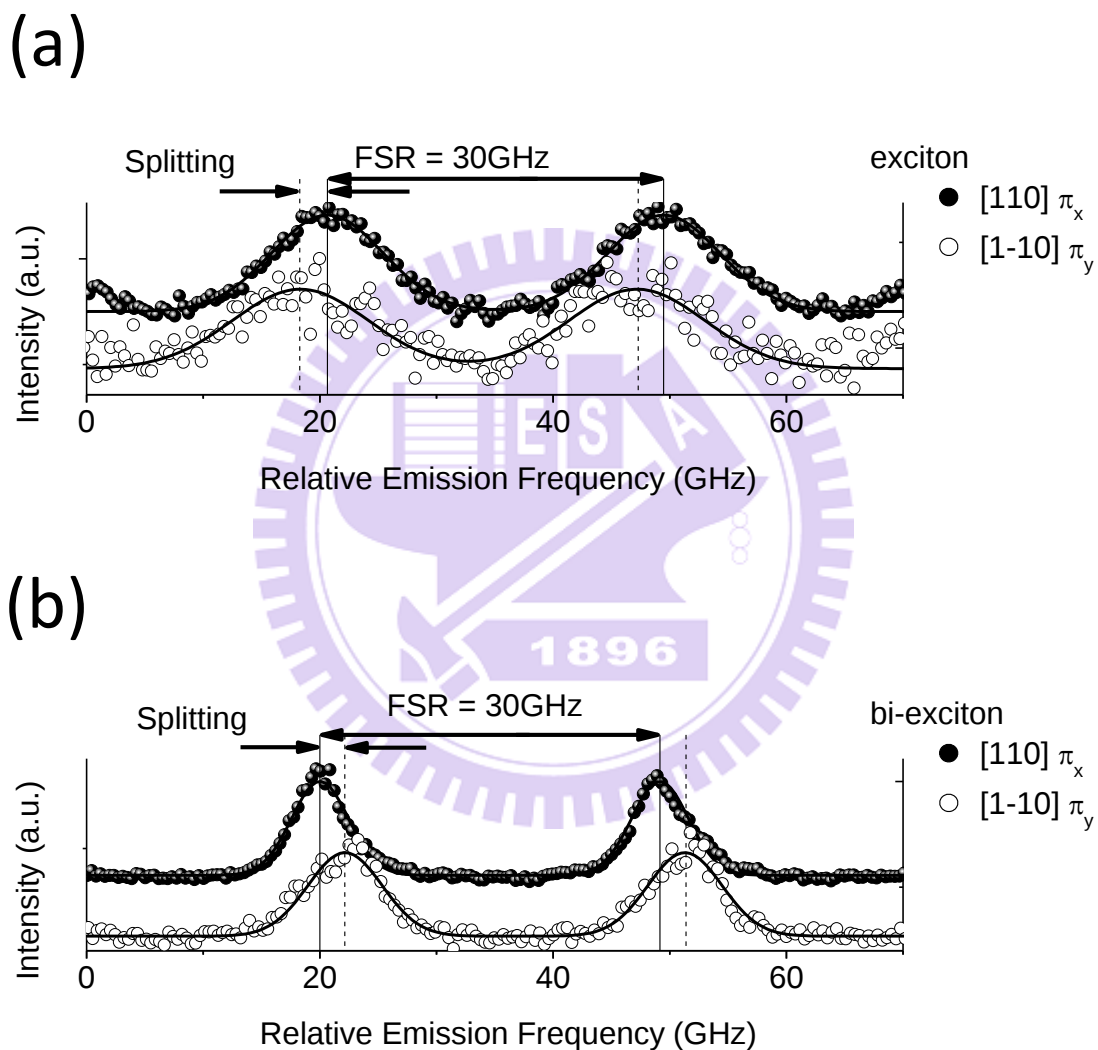
【圖 4-5】 激子和雙激子分別在兩個偏振方向的光激螢光光譜。

定義樣品的[110]方向和[1-10]方向為 π_x 和 π_y 。上圖為量測平行於樣品 π_x 和 π_y 方向的偏振螢光訊號。在量子點系統中，激子和雙激子訊號的具有精細結構分裂，且兩者偏振方向相同。在此的激子螢光訊號，其 π_x 的能量高於 π_y ，螢光強度也是 π_x 高於 π_y ；而雙激子訊號，其能量是 π_x 高於 π_y ，螢光強度一樣是 π_x 高於 π_y 。而 π_x 和 π_y 方向的偏振螢光強度有所差異，為量子點

訊號的偏振不對稱性 $P_L = \frac{I_{\pi_x} - I_{\pi_y}}{I_{\pi_x} + I_{\pi_y}} = 60\%$ 。

但在此的激子精細結構分裂能量極小，約為數 10 μeV ；和光譜儀解析度相近，較難得到切確的精細結構分裂能量。因此利用法布立—培若干涉

儀，來解析微小的能量變化。如【圖 4-6】。對於激子訊號， π_x 方向的頻率較 π_y 方向的高 2.5 GHz，替換成能量為 10 μeV ；為激子的精細結構分裂能量。對於雙激子，則是 π_y 方向的頻率較 π_x 方向高 2.5 GHz，替換成能量同樣是 10 μeV 。



【圖 4-6】 圖(a)和(b)分別是利用法布立－培若干涉儀來量測激子和雙激子的譜圖。使用的共振腔模間距(Free spectral range, FSR)為 30 GHz。

4.2 不同應變時的單量子點顯微光激螢光光譜

我們在實驗中將利用 PMN-PT 來對砷化銦量子點外加應力，以調變激子精細結構分裂。但當晶格受到應力而形變時，將會影響到半導體的能帶結構，使能隙大小改變。則將可由激子能量變化程度，來判定量子點是否有被 PMN-PT 外加應力給影響。以下先分別討論當晶體受到應力時，傳導帶和價電帶的修正量[19]。

對於半導體材料傳導帶中的電子，根據 $\bar{k} \cdot \bar{P}$ 模型，典型的電子能帶結構為

$$E_{c(k)} = E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e^*} \quad (4.1)$$

當晶格產生應變後，代表體積有些微的改變，其單位體積的變化量 $\frac{\delta V}{V}$ ，為三個方向的應變量相加

$$\frac{\delta V}{V} = \varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}$$

將單位體積的變化量，乘上傳導帶的形變位能(Deformation potential) a_c ，即為傳導帶能帶的修正量。修正後的能帶結構為

$$E_{c(k)} = E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e^*} + a_c (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) \quad (4.2)$$

對於價電帶中的電洞，根據 $\bar{k} \cdot \bar{P}$ 模型，利用 Luttinger-Kohn 和 Bir-Pikus 的漢米爾頓方程式，可得到價電帶的能帶結構。電洞本徵函數以 $\left|+\frac{3}{2}\right\rangle$ 、 $\left|-\frac{3}{2}\right\rangle$ 、 $\left|+\frac{1}{2}\right\rangle$ 和 $\left|-\frac{1}{2}\right\rangle$ 作為基底，則價電帶受應力作用的漢米爾頓方程式為

$$H = - \begin{pmatrix} P+Q & R & -S & 0 \\ R^* & P-Q & 0 & S \\ -S^* & 0 & P-Q & R \\ 0 & S^* & R^* & P+Q \end{pmatrix} \begin{matrix} \left| +\frac{3}{2} \right\rangle \\ \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \\ \left| +\frac{1}{2} \right\rangle \\ \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \end{matrix} \quad \begin{matrix} P = P_k + P_\varepsilon \\ Q = Q_k + Q_\varepsilon \\ R = R_k + R_\varepsilon \\ S = S_k + S_\varepsilon \end{matrix} \quad (4.3)$$

$$\begin{aligned} P_\varepsilon &= -a_v (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) \\ Q_\varepsilon &= \frac{-b}{2} (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} - 2\varepsilon_{zz}) \\ R_\varepsilon &= \frac{\sqrt{3}b}{2} (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}) - id\varepsilon_{xy} \\ S_\varepsilon &= -d (\varepsilon_{xz} - i\varepsilon_{yz}) \end{aligned} \quad (4.4)$$

其中 a_v 、 b 和 d 為傳導帶的形變位能。解出(4.3)式的本徵值，可得到重電洞

和輕電洞的能量，分別是 E_{HH} 和 E_{LH}

$$\begin{aligned} E_{HH(k)} &= -P_\varepsilon - P_k - \text{sgn}(Q_\varepsilon) \sqrt{(Q_\varepsilon + Q_k)^2 + |R_k|^2 + |S_k|^2} \\ E_{LH(k)} &= -P_\varepsilon - P_k + \text{sgn}(Q_\varepsilon) \sqrt{(Q_\varepsilon + Q_k)^2 + |R_k|^2 + |S_k|^2} \\ (\text{sgn}(Q_\varepsilon) &= +1 \text{ for } Q_\varepsilon > 0, \text{sgn}(Q_\varepsilon) = -1 \text{ for } Q_\varepsilon < 0) \end{aligned} \quad (4.5)$$

因載子大多為在能帶中心(Zone center) $\vec{k}=0$ ，在此只考慮關於 Bir-Pikus 的應變項；並忽略掉剪應變量 $\varepsilon_{xy} = \varepsilon_{yz} = \varepsilon_{zx} = 0$ 。且之後所討論的材料，大多為受到壓縮應變(Compression strain)，對於 Q_ε 項是負值。近似後的重電洞能階為

$$E_{HH(k=0)} = -P_\varepsilon + \sqrt{|Q_\varepsilon|^2 + |R_\varepsilon|^2} \quad (4.6)$$

最後可得到當晶格受應變影響下的能隙為

$$\begin{aligned} E_{c(k=0)} - E_{HH(k=0)} \\ = E_g + (a_c - a_v) (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) - \sqrt{|Q_\varepsilon|^2 + |R_\varepsilon|^2} \end{aligned} \quad (4.7)$$

實驗所製備的元件有兩種，分別是使用晶面方向為 [001] 和 [011] 的 PMN-PT；能給予樣品雙軸應力(Biaxial stress)和單軸應力(Uniaxial stress)。

實際施加不同偏壓來量測激子螢光光譜，結果如【圖 4-7】。所觀察到的激子和雙激子能量，確實會隨著偏壓而變化。實驗所加的偏壓，是從+300 V 到-300 V，偏壓變化量為 600 V；對於雙軸和單軸應力兩種元件，能量變化量分別為 $\Delta E = 765 \mu\text{eV}$ 和 $\Delta E = 465 \mu\text{eV}$ 。若將激子能量變化量由(4.7)式來回推出量子點的應變量變化如【表 4-1】

【表 4-1】 在偏壓變化量為 600 V 的情況下，實驗所量測到激子螢光能量變化量；與所推算出對應的量子點應變量變化。

元件種類	能量變化量	x 方向的 應變量變化 $\Delta\epsilon_{xx}$	y 方向的 應變量變化 $\Delta\epsilon_{yy}$
	ΔE		
雙軸應力元件	765	0.43 ‰	0.43 ‰
單軸應力元件	465	0.89 ‰	-0.37 ‰

而元件製備時，是將量子點樣品的 π_x 和 π_y 方向，去對齊 PMN-PT 壓電常數分別為 d_{32} 和 d_{31} 的兩軸。已知 PMN-PT 厚度為 300 μm ，加上 600 V 逆偏壓，代表所施加電場為 -20 kV/cm；由(3.1)式可算出 PMN-PT 的應變量變化。對於雙軸應力元件的 PMN-PT，應變量變化分別為 $\Delta\epsilon_{xx} = 0.50 \text{ ‰}$ 和 $\Delta\epsilon_{yy} = 0.50 \text{ ‰}$ ；對於單軸應力元件的 PMN-PT，應變量變化分別為 $\Delta\epsilon_{xx} = 0.88 \text{ ‰}$ 和

$\Delta\varepsilon_{yy} = -0.36 \text{ ‰}$ 。再來將利用模擬軟體 COMSOL，模擬當 PMN-PT 產生如此的應變時，量子點本身的應變量變化為何。並推得當量子點受額外應力時，其能隙的變化量大小，是否和實驗數據相符，以確保量子點有感受到 PMN-PT 所外加的應力。模擬所建立的模型如【圖 4-8】。PMN-PT 上面是完整的量子點樣品結構；所使用的量子點形狀是截角金字塔，下底邊長為 13.6 nm，上底邊長為 5.6 nm。

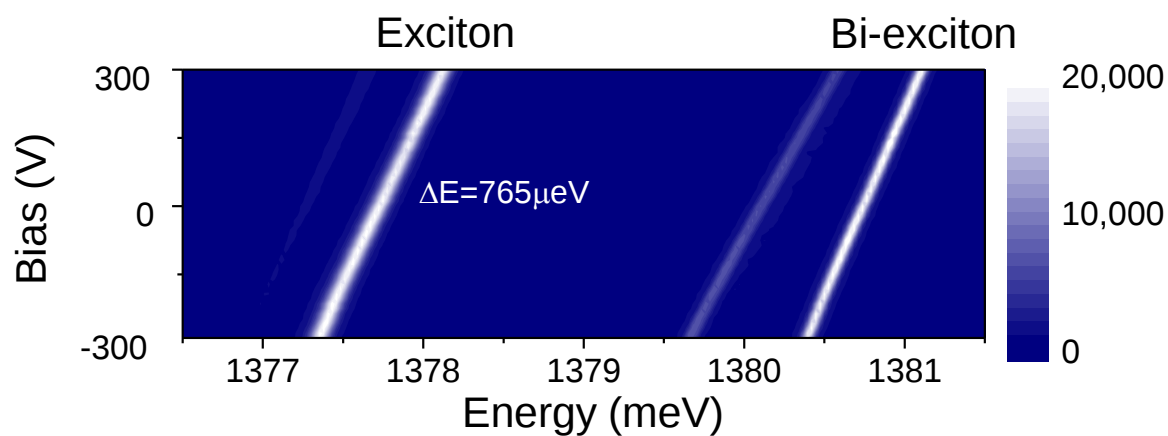
雙軸應力元件所模擬的結果如【圖 4-9】。單軸應力元件的如【圖 4-10】。兩種元件的能隙變化量如【圖 4-11】。可觀察到不論是雙軸或是單軸應力的元件，量子點產生的額外應變量，都略高於 PMN-PT 自己所產生的應變量。而量子點的應變量變化和能隙變化量如【表 4-2】。

【表 4-2】 在偏壓變化量為 600 V 的情況下，模擬所得到激子螢光能量變化量；與所推算出對應的量子點應變量變化。

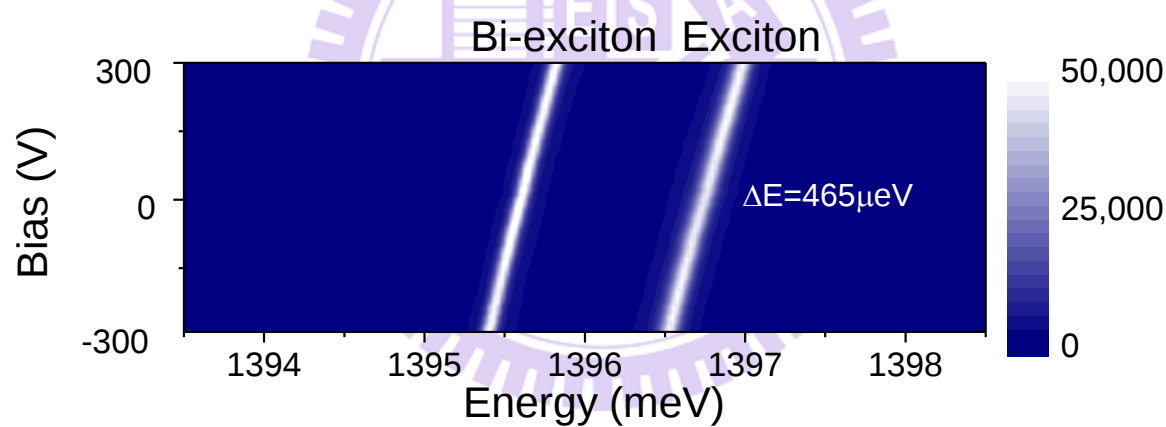
元件種類 (設定 PMN-PT 應變量變化)	能量變化量 ΔE	x 方向的 應變量變化 $\Delta \varepsilon_{xx}$	y 方向的 應變量變化 $\Delta \varepsilon_{yy}$
雙軸應力元件 $\left(\begin{array}{l} \Delta \varepsilon_{xx} = 0.50 \text{ ‰} \\ \Delta \varepsilon_{yy} = 0.50 \text{ ‰} \end{array} \right)$	1100	0.55 ‰	0.55 ‰
單軸應力元件 $\left(\begin{array}{l} \Delta \varepsilon_{xx} = 0.88 \text{ ‰} \\ \Delta \varepsilon_{yy} = -0.36 \text{ ‰} \end{array} \right)$	600	1.00 ‰	-0.36 ‰

實驗所得到激子的能量變化量，和模擬結果相比；對於雙軸應力元件約有模擬結果的七成、單軸應力元件約有八成。雖然略小於理想情況，但代表 PMN-PT 所產生的應變，確實能夠對砷化銦造成影響，進而改變量子點的應變量和能量。

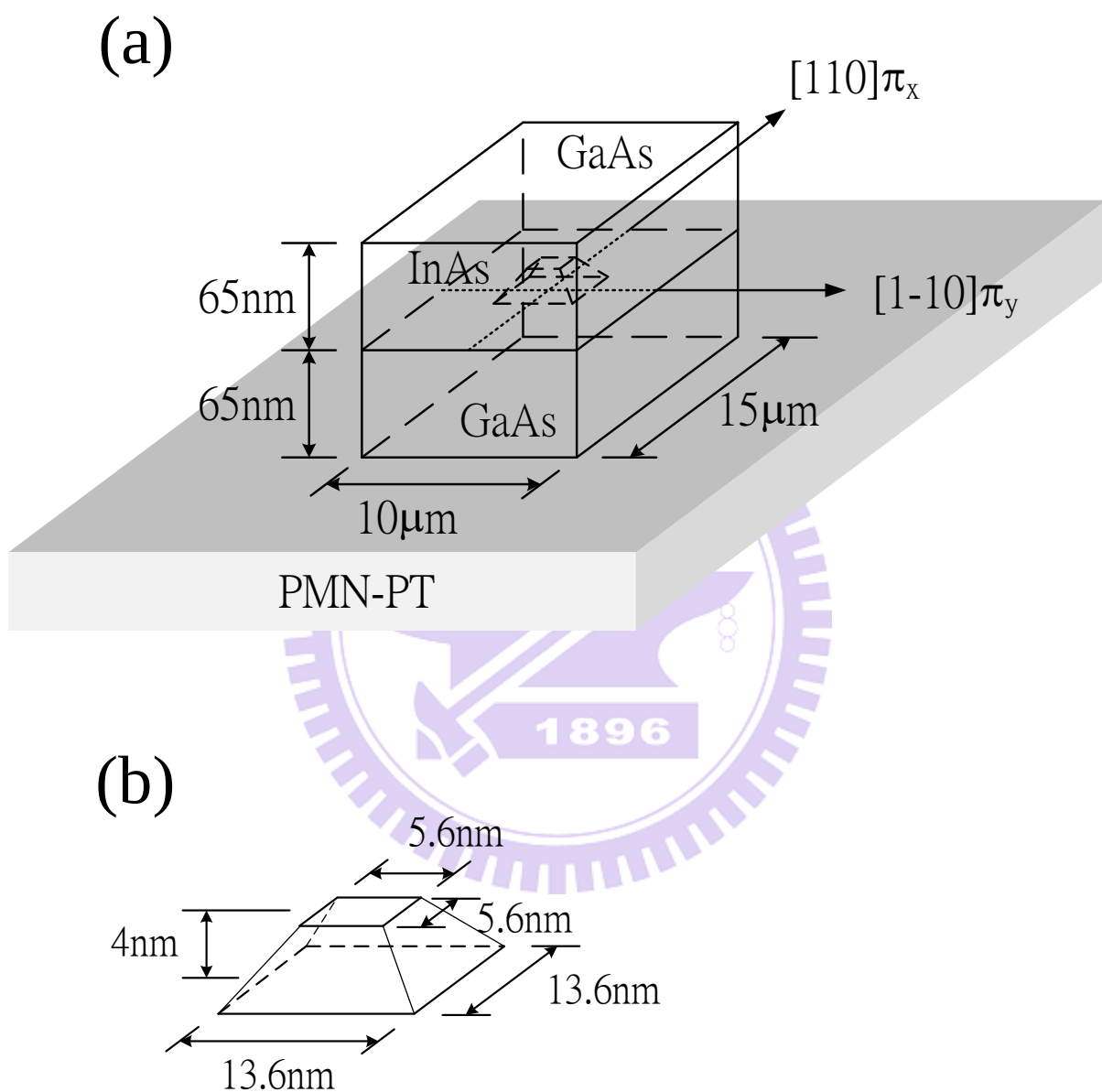
Biaxial stress



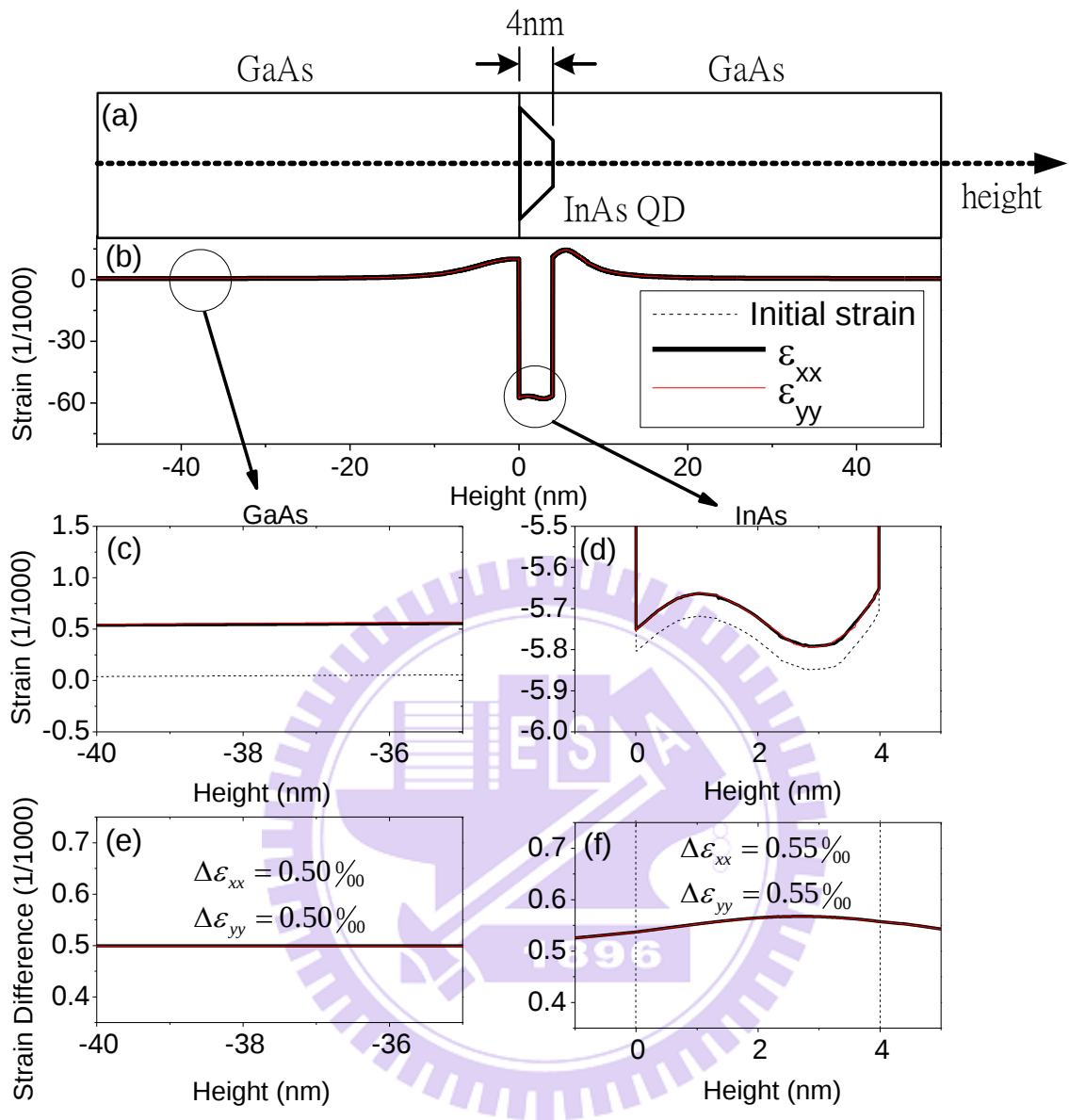
Uniaxial stress



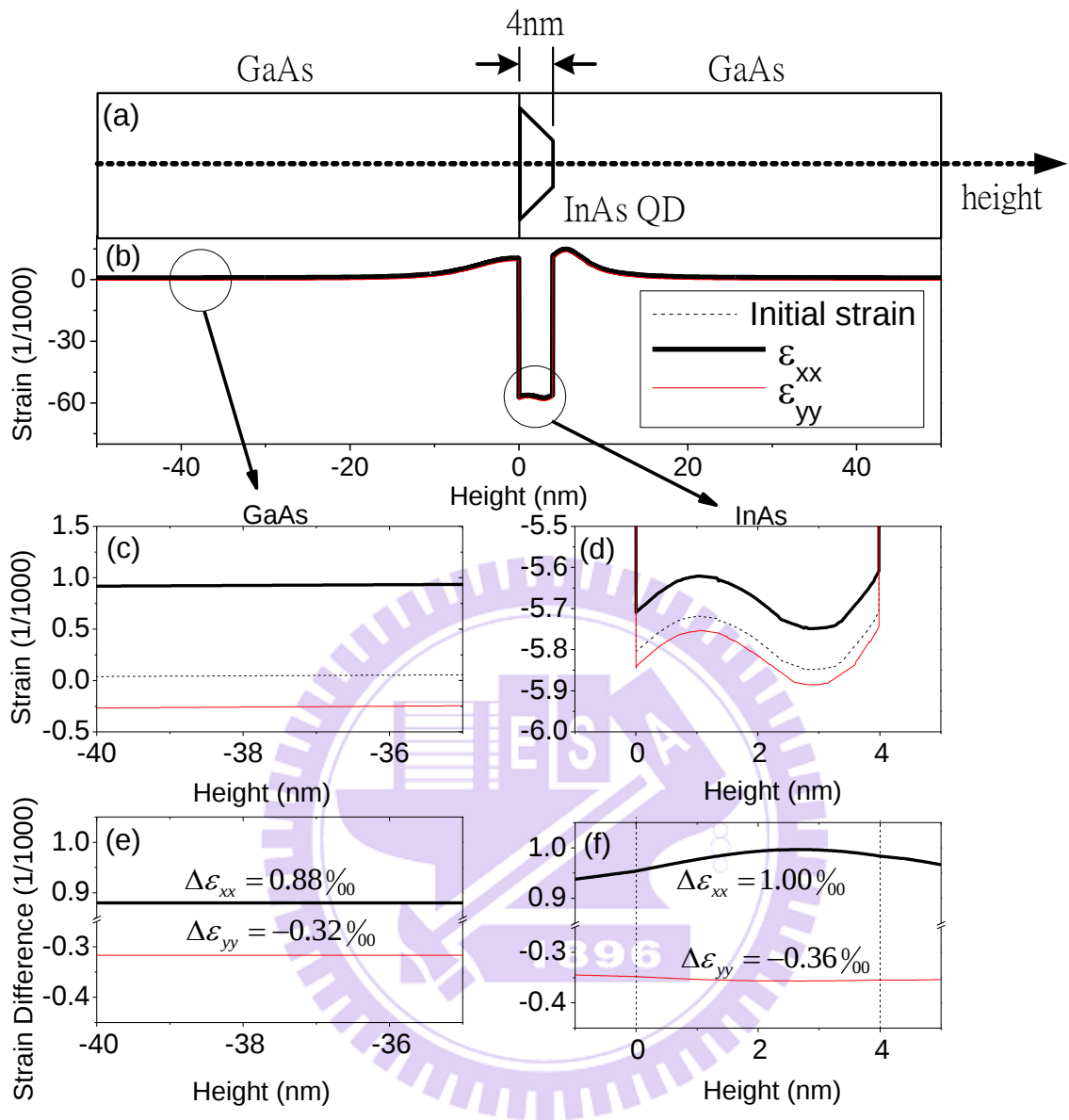
【圖 4-7】 對 PMN-PT 施加不同偏壓時的激子螢光光譜圖。



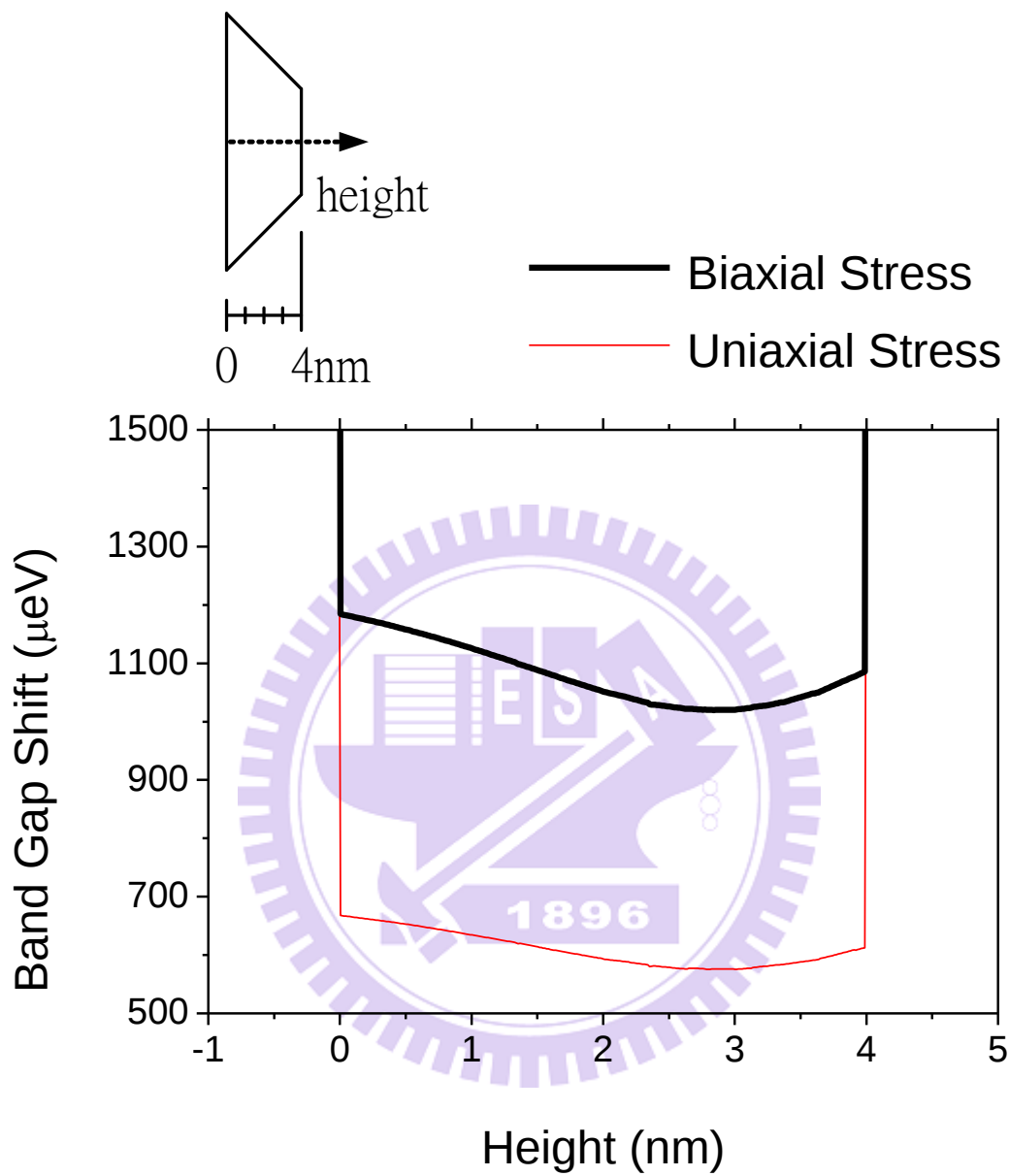
【圖 4-8】 圖(a)為模擬所設定的量子點樣品結構。圖(b)為截角金字塔量子點細部結構。



【圖 4-9】 雙軸應力元件的模擬結果，設定 PMN-PT 在 x 和 y 方向同時有 0.50 %的應變量變化。圖(a)為量子點樣品結構。圖(b)為沿著量子點中心，量子點樣品所模擬的應變量大小。圖(c)和(d)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量大小。圖(e)和(f)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量變化。



【圖 4-10】單軸應力元件的模擬結果，設定 PMN-PT 在 x 和 y 方向分別有 0.88 ‰和-0.36 ‰的應變量變化。圖(a)為量子點樣品結構。圖(b)為沿著量子點中心，量子點樣品所模擬的應變量大小。圖(c)和(d)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量大小。圖(e)和(f)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量變化。



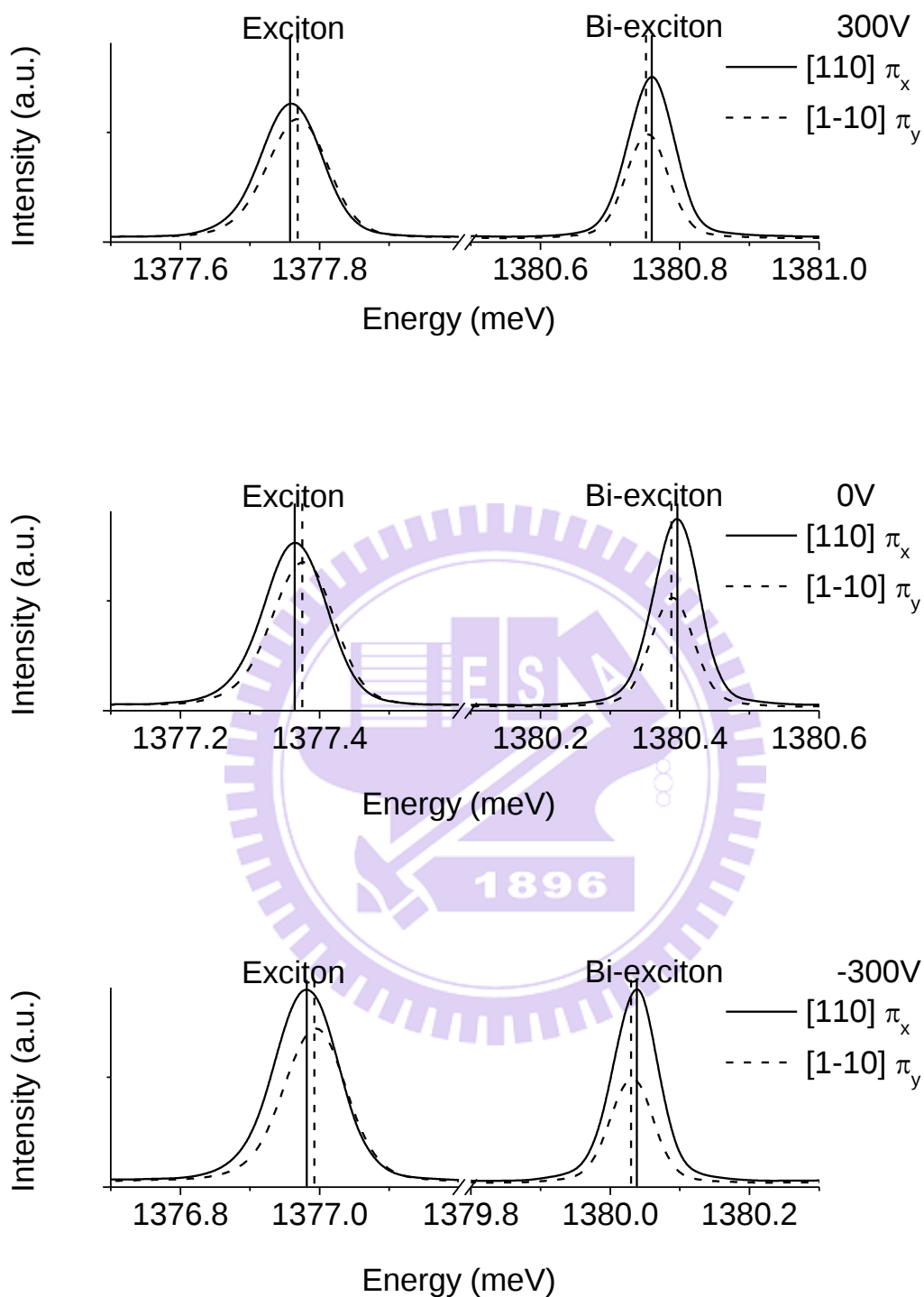
【圖 4-11】 單軸和雙軸應力元件沿著量子點中心，所模擬的能隙變化量。

4.3 不同應變時的單量子點精細結構分裂

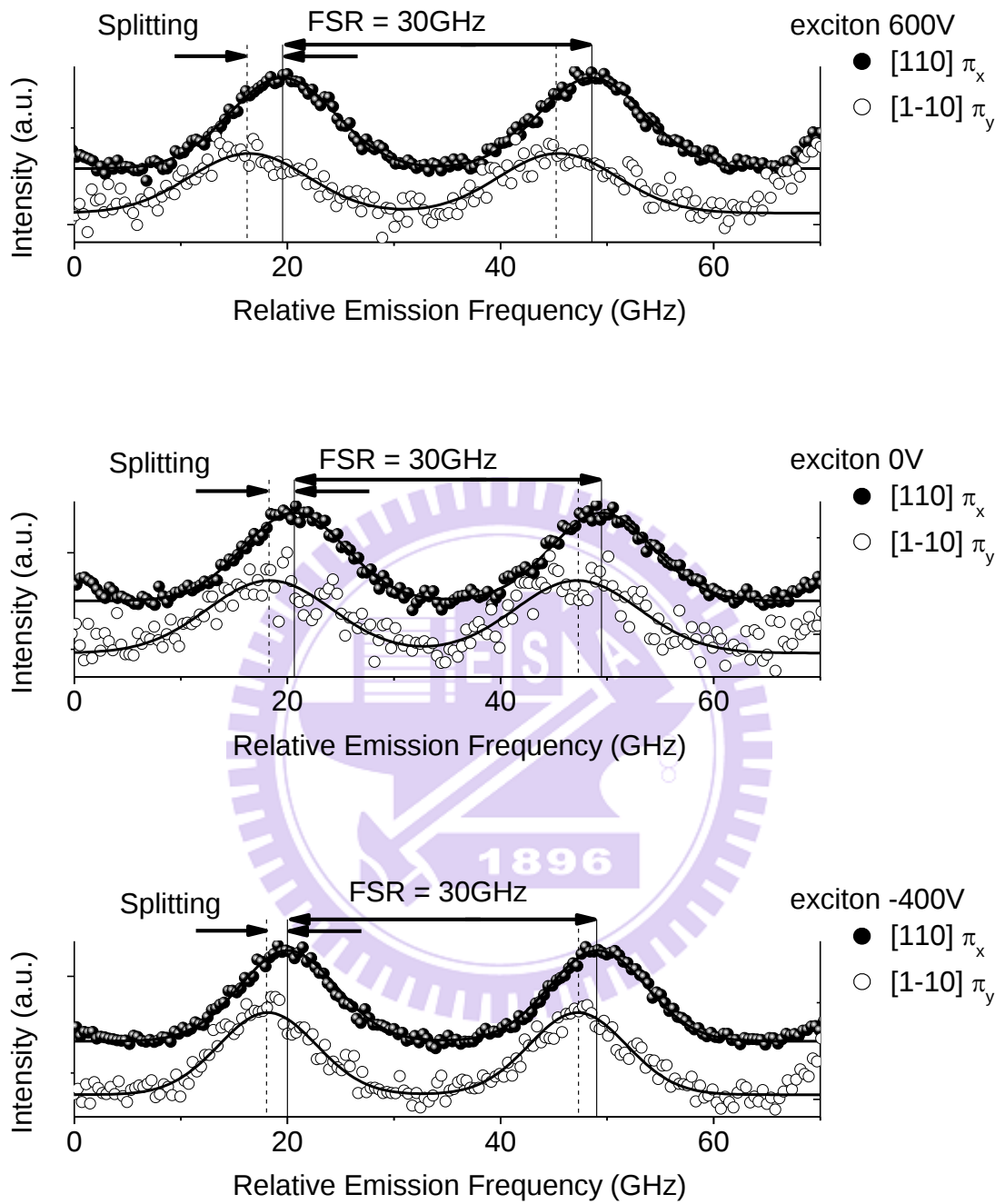
激子的精細結構分裂，是由量子點內電偶矩之間的庫倫作用力所造成。當量子點受到應力時，將會改變電偶矩的大小，使能階分裂隨著改變。實驗上經過了數次激子螢光光譜的量測，歸納出量子點受應力後能階分裂變化的規律。如同由 2.4 節所敘，精細結構分裂與應變不對稱性(Strain anisotropy)有著很大的關係。

根據【圖 4-5】和【圖 4-6】，激子在兩偏振方向的光激螢光光譜，可觀察到激子螢光能量是 π_x 高於 π_y 。而對於 π_y 方向能量比較低的激子訊號，若要減少精細結構分裂量，必須對量子點 π_y 方向外加壓縮應力，或是對 π_x 方向外加伸張應力。

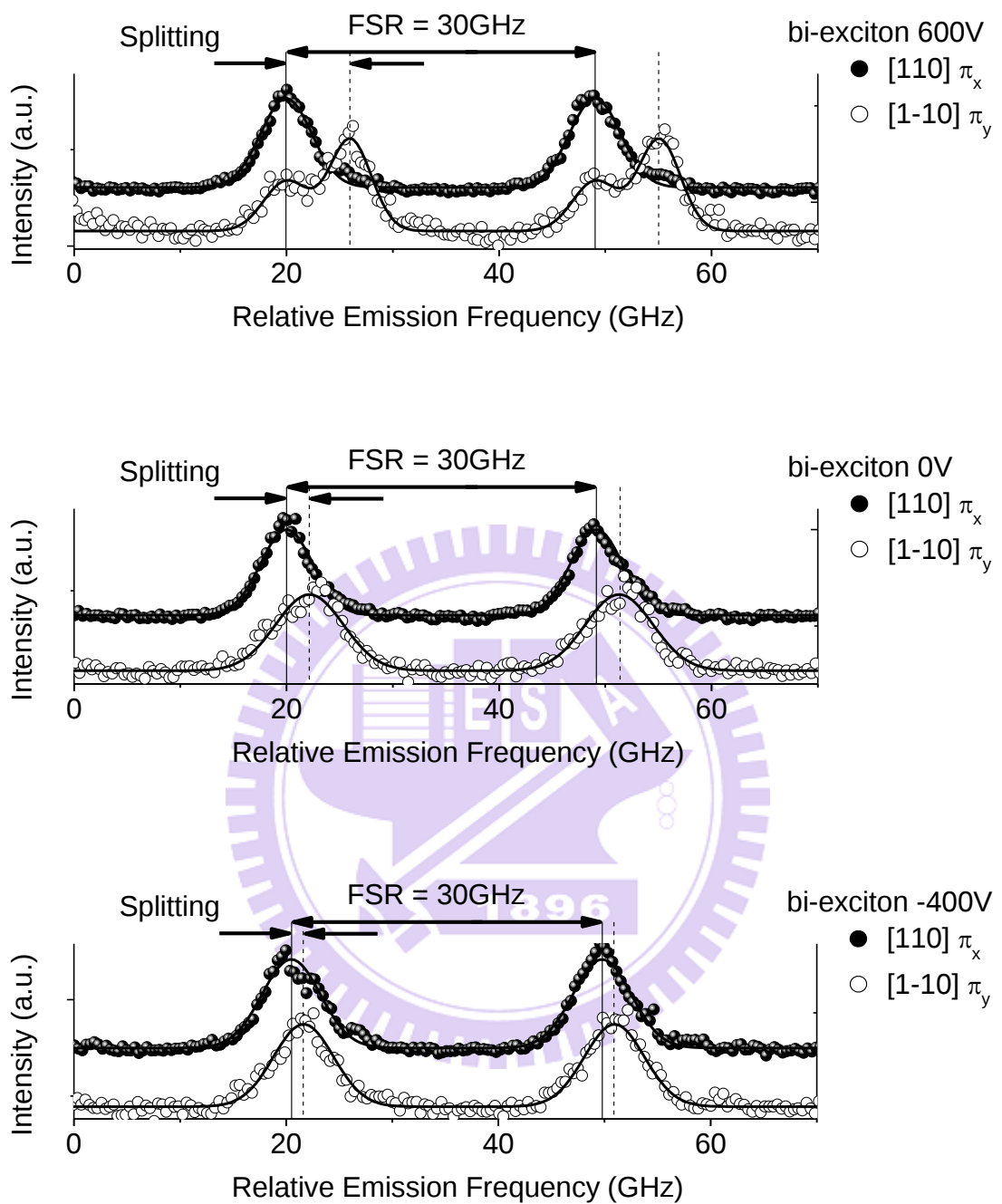
在此製備了兩種元件，分別是使用晶面方向為[001] 和[011]的 PMN-PT，也就是能給予樣品雙軸應力和單軸應力。對於雙軸應力的元件，PMN-PT 隨偏壓分別在 π_x 和 π_y 方向所施加的應力皆相同，因此應變不對稱性不會改變。對於單軸應力的元件，當 PMN-PT 在逆偏壓時，將會在 π_x 方向施加一個伸張應力，並在 π_y 方向施加一個強度為 40%的壓縮應力；可大幅改變應變不對稱性。將量測兩種元件在不同偏壓下的偏振螢光光譜，來驗證應變不對稱性是否會影響精細結構分裂。



【圖 4-12】 雙軸應力元件，分別在 300 V、0 V 和 -300 V 時的量測偏振螢光光譜。其中 300 V 是給樣品額外的壓縮應力；-300 V 是給樣品額外的伸張應力。

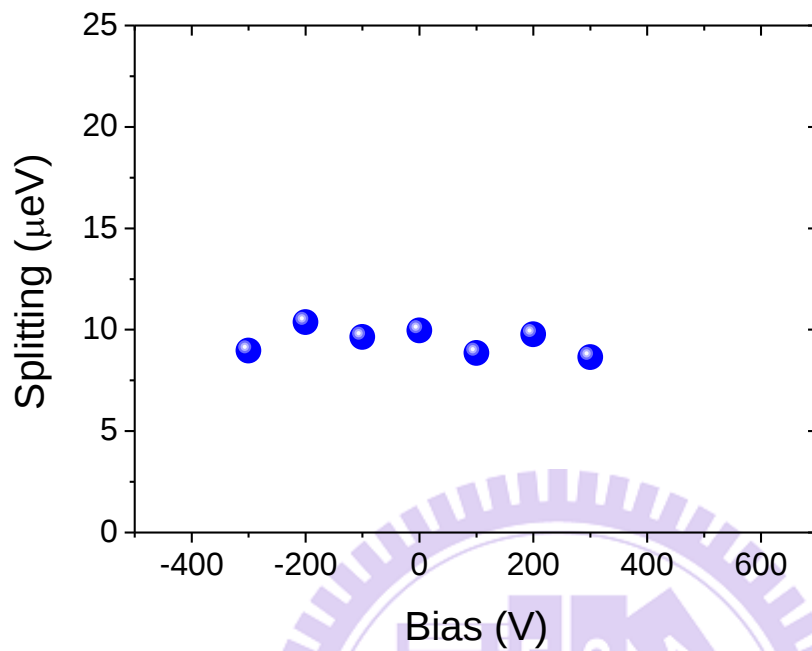


【圖 4-13】 單軸應力元件，分別在 600 V、0 V 和 -400 V 時利用法布立—培干涉儀量測激子的精細結構分裂。其中 600 V 是給樣品額外的壓縮應力；-400 V 是給樣品額外的伸張應力。

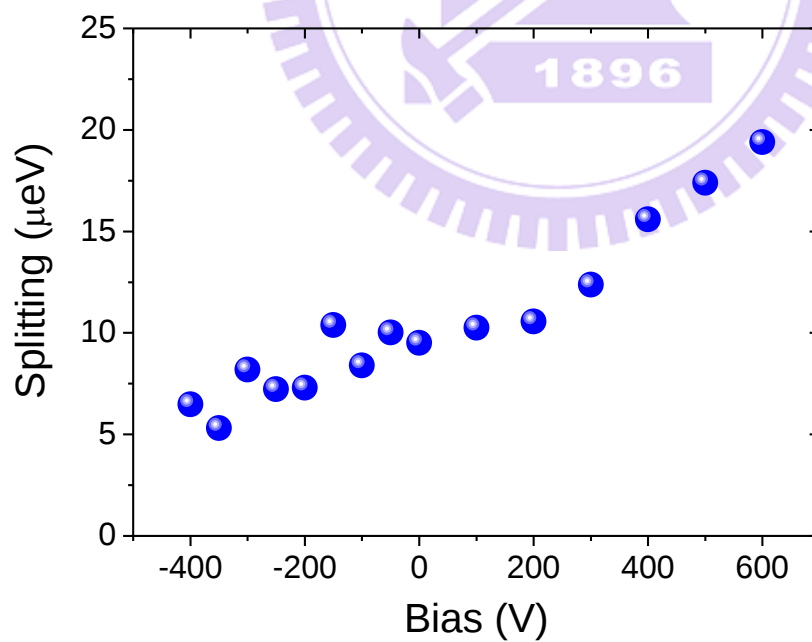


【圖 4-14】 單軸應力元件，分別在 600 V、0 V 和 -400 V 時利用法布立—培若干涉儀量測雙激子的精細結構分裂。

(a) Biaxial stress



(b) Uniaxial stress

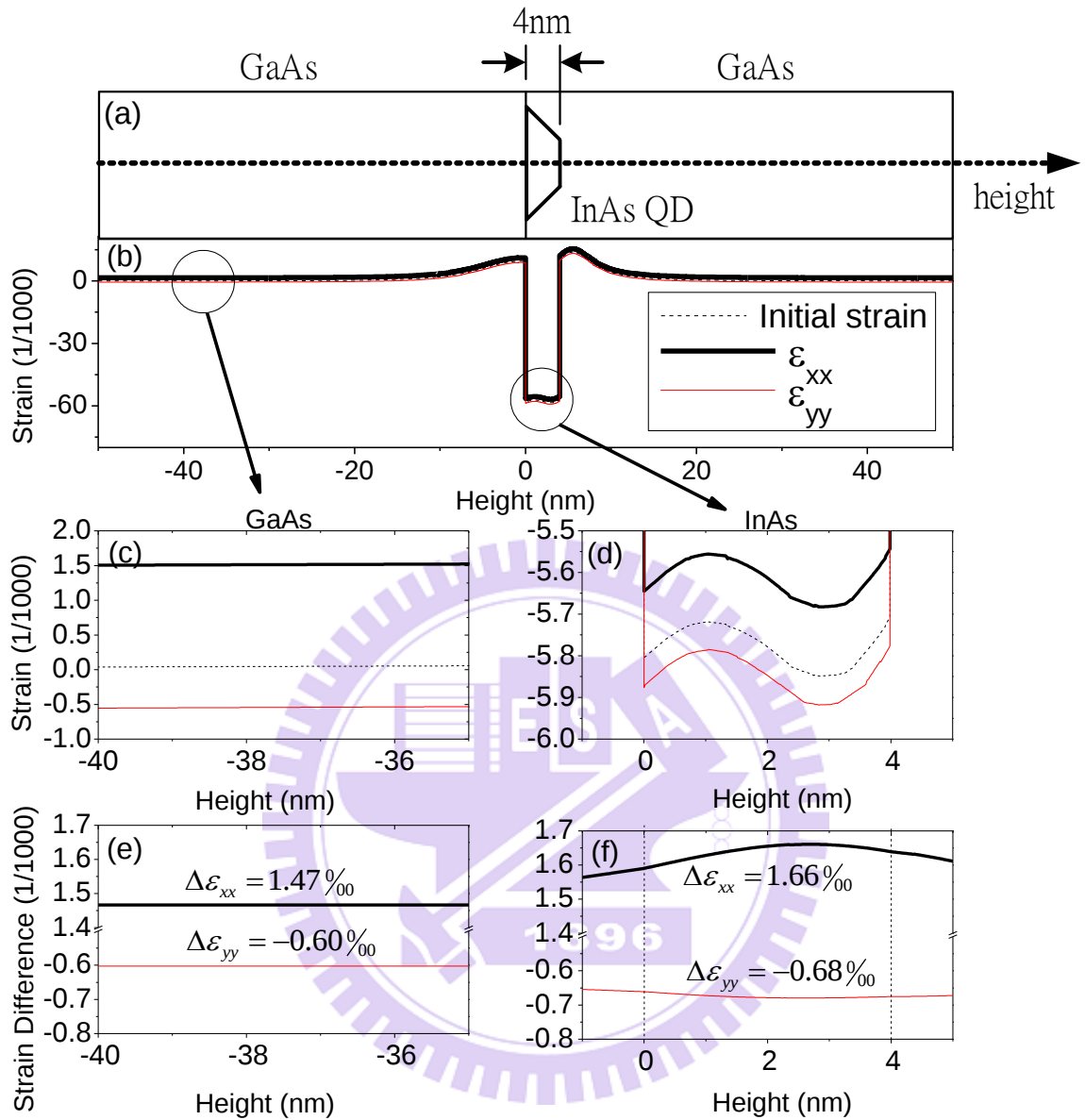


【圖 4-15】 雙軸應力和單軸應力的元件，施加偏壓和精細結構分裂關係

圖。

對於雙軸應力元件，施加不同偏壓來量測的偏振螢光光譜，實驗結果如【圖 4-12】和【圖 4-15(a)】。可觀察到偏壓從+300 V 到-300 V，精細結構分裂大小並無明顯變化。對於單軸應力元件，施加不同偏壓時利用法布立—培干涉儀來量測的高解析度偏振螢光光譜，實驗結果如【圖 4-13】、【圖 4-14】和【圖 4-15(b)】。可觀察到不論是激子或是雙激子，偏壓從+600 V 到-400 V，精細結構分裂大小隨著偏壓減少而降低。可由此證實調變應變不對稱性，能控制精細結構分裂量的大小。

為了得到量子點上應變不對稱性的量，和 4.2 節同樣使用模擬軟體 COMSOL，來模擬當 PMN-PT 產生額外應力時，位在砷化鎵內砷化銦量子點的應變情況。對於單軸應力的元件，實驗所加的偏壓，是從+600 V 到-400 V，變化量為 1000 V；由(3.1)式可算出單軸應力元件的 PMN-PT 應變量變化為 $\Delta\varepsilon_{xx}=1.47\text{ ‰}$ 和 $\Delta\varepsilon_{yy}=-0.60\text{ ‰}$ 。模擬結果如【圖 4-16】。而模擬所得的量子點應變量變化約為 $\Delta\varepsilon_{xx}=1.66\text{ ‰}$ 和 $\Delta\varepsilon_{yy}=-0.68\text{ ‰}$ 。



【圖 4-16】單軸應力元件的模擬結果，設定 PMN-PT 在 x 和 y 方向分別有 1.47 ‰和-0.60 ‰的應變量變化。圖(a)為量子點樣品結構。圖(b)為沿著量子點中心，量子點樣品所模擬的應變量大小。圖(c)和(d)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量大小。圖(e)和(f)分別是砷化鎵和砷化銦量子點的應變量變化。

PMN-PT 將使量子點的應變不對稱性 $\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}$ ，增加約 2.34 ‰。而由 2.4 節所推導出應變不對稱性和精細結構分裂的關係，為(2.29)式

$$\Delta_{FSS} \equiv E_+ - E_- = \Delta_1 + \frac{2\delta_0 b}{\Delta_{lh}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy})$$

而上式的 $\frac{2\delta_0 b}{\Delta_{lh}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}}$ 項會影響之間關係的斜率。其中 b 為砷化銦的形變位能 $b = -1.8 \text{ eV}$ 。所以需要假設三個項 $\delta_0 = 0.1 \text{ meV}$ 、 $\Delta_{lh} = 40 \text{ meV}$ 、 $\frac{I_{hl}}{I_{hh}} = 1$ 。 δ_0 是電子-電洞交換作用中，明激子和暗激子能量差； Δ_{lh} 為重電洞和輕電洞的能階差； I_{hl} 和 I_{hh} 是輕電洞或重電洞間的重疊積分。由 4.1 節知道激子螢光的偏振不對稱性 P_L 約為 60 %。而 P_L 和上式中的 γ 的關係為(2.26)式

$$P_L = \frac{2\gamma}{1 + \gamma^2}$$

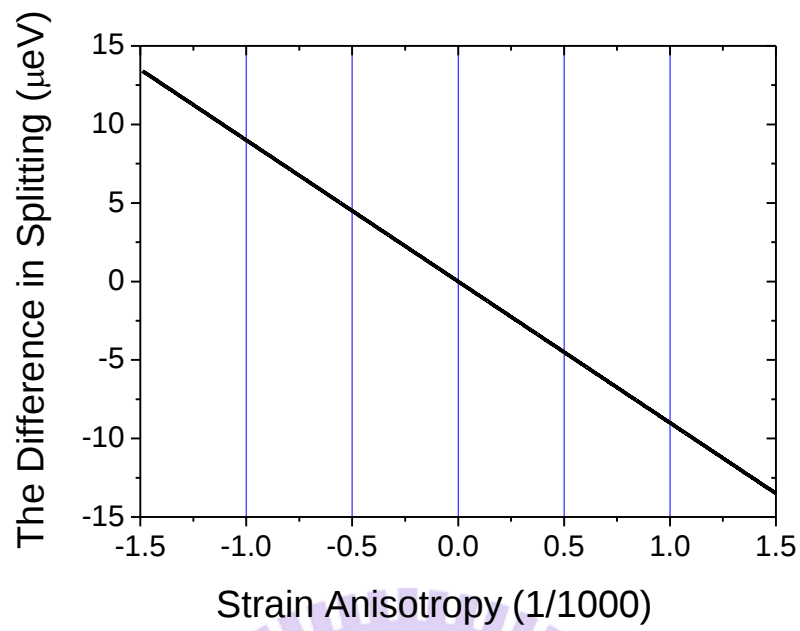
可解出 γ 項約為 33.3%。又 $\gamma = \frac{\rho}{\sqrt{3}\Delta_{lh}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}}$ ，可由此得到 ρ 和 Δ_{lh} 間的比例。其中 ρ 是代表了價電帶混合效應的程度，且 $\rho = \frac{\sqrt{3}b}{2} (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy})$ 。假設當量子點成長時就已經擁有 1.5 % 的應變不對稱性，可由此推得 ρ 的值為 $\rho = 23 \text{ meV}$ ；並且再由 ρ 的大小去換算 Δ_{lh} 的量為 $\Delta_{lh} = 40 \text{ meV}$ 。至於 δ_0 項的部分只能先用假設的，拿一般的量子點的 δ_0 值來替代之。

利用以上所假設的參數，可得到當量子點在不同的應變不對稱性時，激子精細結構分裂的變化量，如圖【圖 4-17】。且將量子點的應變不對稱性，換算成所對應到的偏壓；並以 0 V 時的精細結構分裂量當成 Δ_1 。如此可得到理論上偏壓和精細結構分裂的關係，如【圖 4-18】。所量測到的精細結構分裂，大致上和理論上的估計值相符；代表 PMN-PT[011]所產生的不對稱

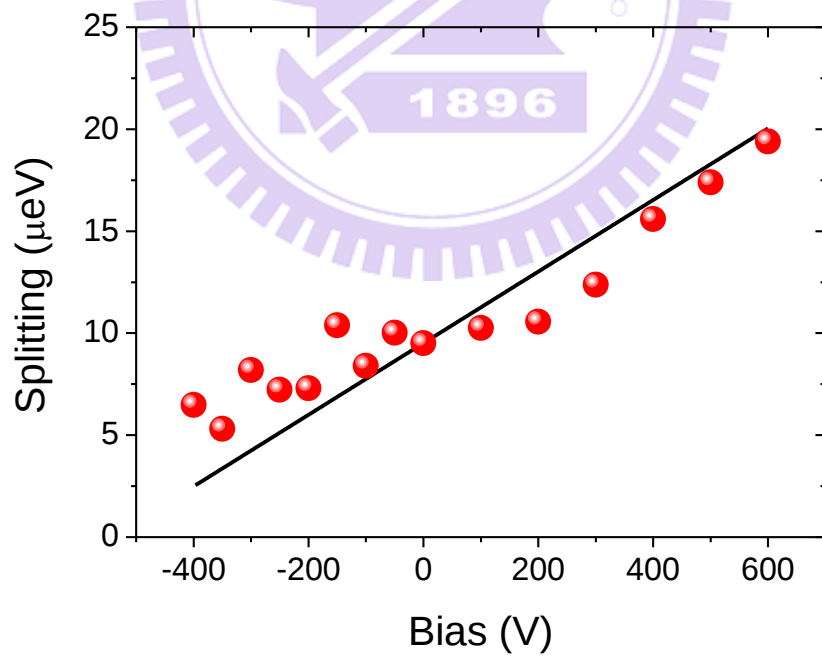
應力，確實能夠對砷化銦造成影響，進而改變激子的精細結構分裂大小。

若想要更加減少精細結構分裂量，則必須提供更大的逆向偏壓給 PMN-PT。但因 PMN-PT 為鐵電材料，在內部擁有內建的電偶矩。若是外加的逆向偏壓太大時，將容易造成樣品的毀損。





【圖 4-17】 應變不對稱性對激子精細結構分裂變化量之關係圖。



【圖 4-18】 單軸應力元件；施加偏壓和精細結構分裂關係圖。線條是理論估計的結果。圓點是實驗所量測的值。

4.4 不同應變時的單量子點偏振螢光光譜

由 4.3 節所敘，利用外加應力來使激子的精細結構分裂減少。但觀察雙激子的結果如【圖 4-14】，偏壓在+600 V 所量測 π_y 方向的譜線，很明顯有 π_x 的光混入其中；且在 0 V 時則無此現象發生。由於雙激子譜線半寬較窄，才看得出明顯的變化。

對於單軸應力的元件，來量測不同偏壓時的激子偏振螢光光譜，並分析各個偏振角激子訊號的強度和能量，其結果如【圖 4-19】。並分析各個偏壓時，螢光強度與能量的偏振方向，其結果如【圖 4-20】。可觀察到螢光強度偏振方向(Polarization)不隨著偏壓而改變；偏振不對稱性也較無明顯變化，如【圖 4-21】。但對於螢光能量偏振方向(Eigenaxes)卻隨著偏壓增加而慢慢變大。可能是電洞波函數被改變而影響偏振方向。實驗所定義的 π_x 和 π_y 方向分別是代表晶軸方向的[110]和[1-10]。偏壓加大，代表和 π_x 方向受到越來越大的壓縮應力，而量子點應變不對稱性增加，激子的精細結構分裂量也跟著增加。

π_x 和 π_y 方向能量偏振方向會隨著外加應力的改變[20]。因對量子點產生額外的單軸應力時，所造成的位能變化，增加了 $V_s(\bar{n})p$ 項

$$V_s(\bar{n})p = \begin{pmatrix} \alpha_3 p & \beta p \\ \beta p & \alpha_4 p \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |3\rangle \\ |4\rangle \end{pmatrix}$$

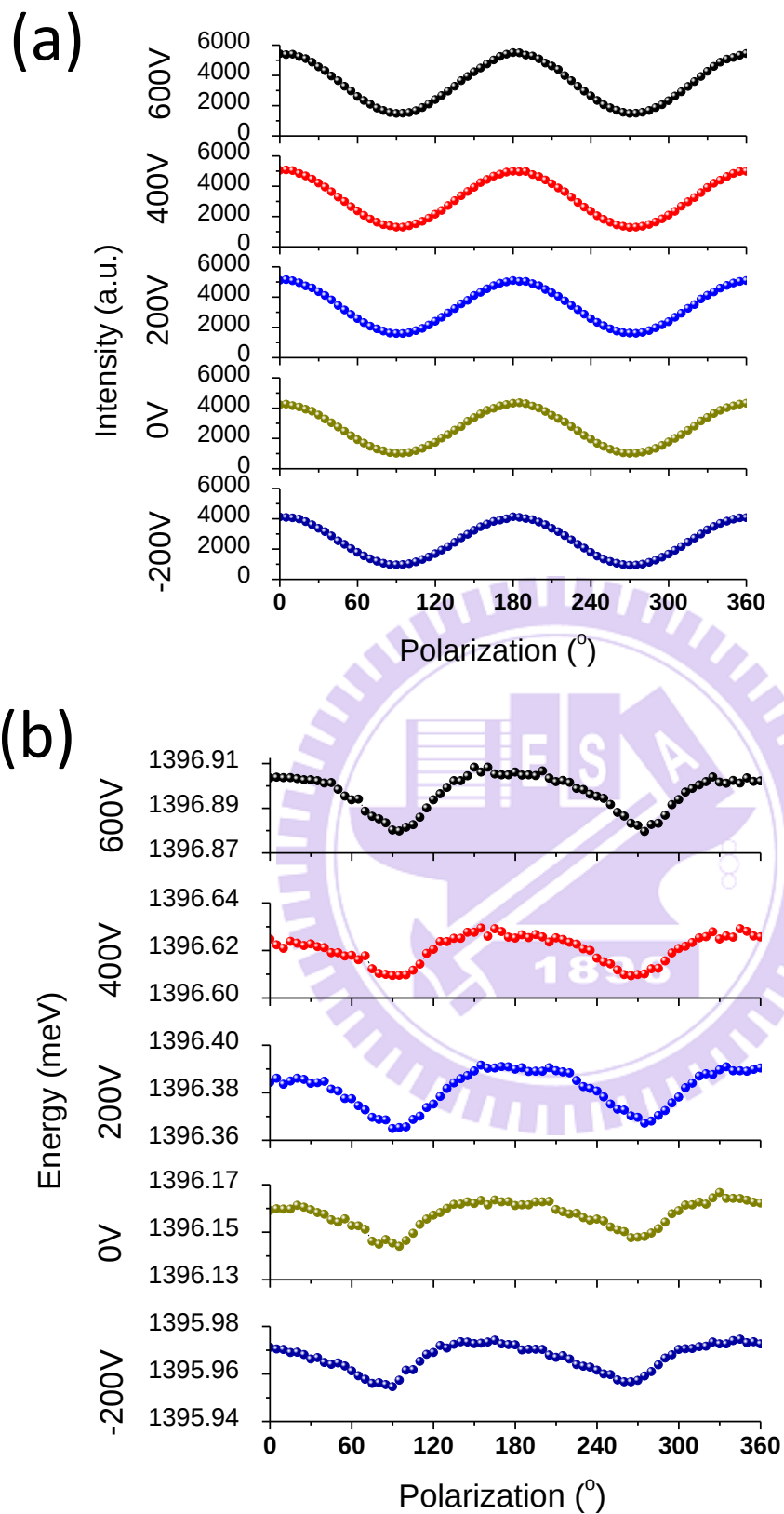
其中， $|3\rangle$ 和 $|4\rangle$ 是明激子的本徵態，在此被當作基底； p 為外加應力的大小，

$\bar{n}$ 為外加應力的方向。若現有激子的漢米爾頓方程式加入此項，即

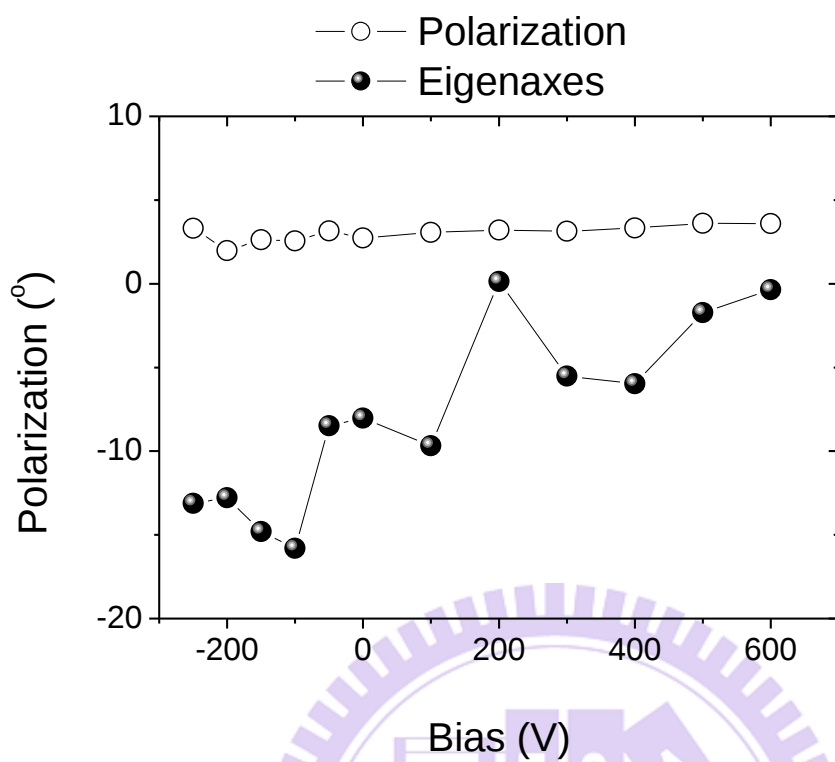
$$H = H_{ex} + V_s(\vec{n})p$$

再解出以上的漢米爾頓方程式，才為所量測到的激子能態。而考慮外加應利影響的明激子，其新的本徵態為 $|\psi_{\pm}\rangle = f(\alpha, p, \beta)|3\rangle + |4\rangle$ 。而本徵態中 $|3\rangle$ 和 $|4\rangle$ 之間的疊加程度，將會受到外加應力影響；且兩者的比例會決定能量偏振方向。所以當實驗改變外加應力時，波函數會漸漸變成另一種疊加狀態，相對應的能量偏振方向也會隨著改變。

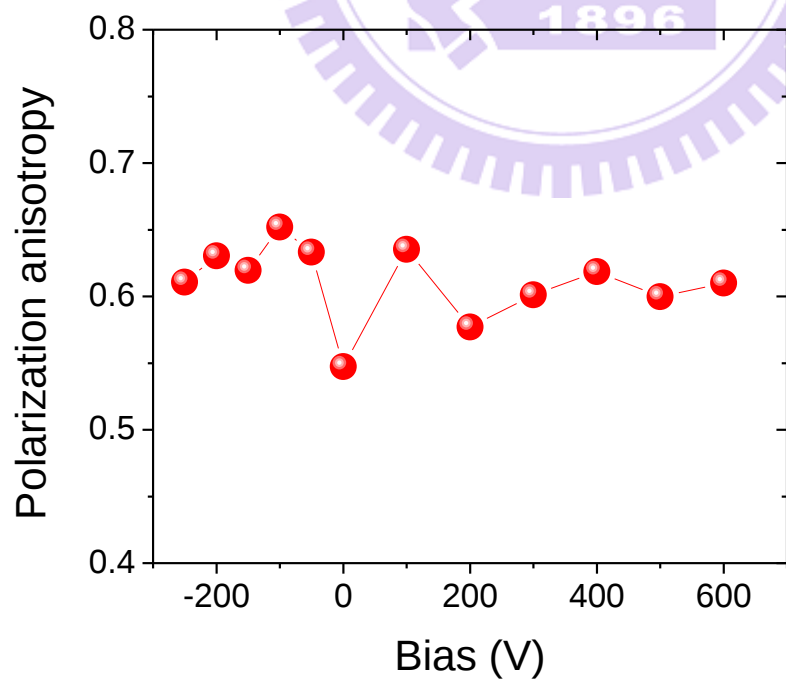




【圖 4-19】 圖(a)為不同偏壓時偏振角對螢光強度關係。圖(b)為偏振角對螢光能量關係。



【圖 4-20】 不同偏壓時的螢光強度偏振方向與螢光能量偏振方向。



【圖 4-21】 不同偏壓時的激子螢光偏振不對稱性。

4.5 單量子點的糾纏態程度

理想情況下的激子與雙激子螢光，是互為糾纏態的圓偏振光。量子點會先發出雙激子螢光，再發出激子螢光。雙激子螢光可能是左旋光，也可能是右旋光，同時存在著兩種狀態，是為簡併態；而後發出的激子螢光也是。擁有兩種放光路徑，如【圖 4-22(a)】。此時若去量測激子的偏振狀態而得到左旋光的結果，則雙激子的偏振狀態將瞬間變成右旋光。這樣的激子與雙激子將互為糾纏態，而兩種放光路徑所代表的量子態是不可被因式分解的。

但量子點經由電子-電洞交換作用、和價電帶混合效應等影響下，導致激子能階分裂；激子螢光也變成 π_x 和 π_y 方向的兩道線偏振光，如【圖 4-22(b)】。將樣品上的 π_x 和 π_y 方向，分別定義為 $|H\rangle$ 和 $|V\rangle$ 方向，也就是水平和垂直線偏振光。若激子精細結構分裂減少，原本不同能量的 $|H\rangle$ 和 $|V\rangle$ 線偏振光，將有機會成為簡併態。由於相位的不同，將 $|H\rangle$ 和 $|V\rangle$ 兩道光做線性疊加後，會有以下四種可能性

$$\text{右旋圓偏振光 } |R\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle - i|V\rangle)$$

$$\text{左旋圓偏振光 } |L\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle + i|V\rangle)$$

$$\text{斜 } 45 \text{ 度線偏振光 } |D\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle - |V\rangle)$$

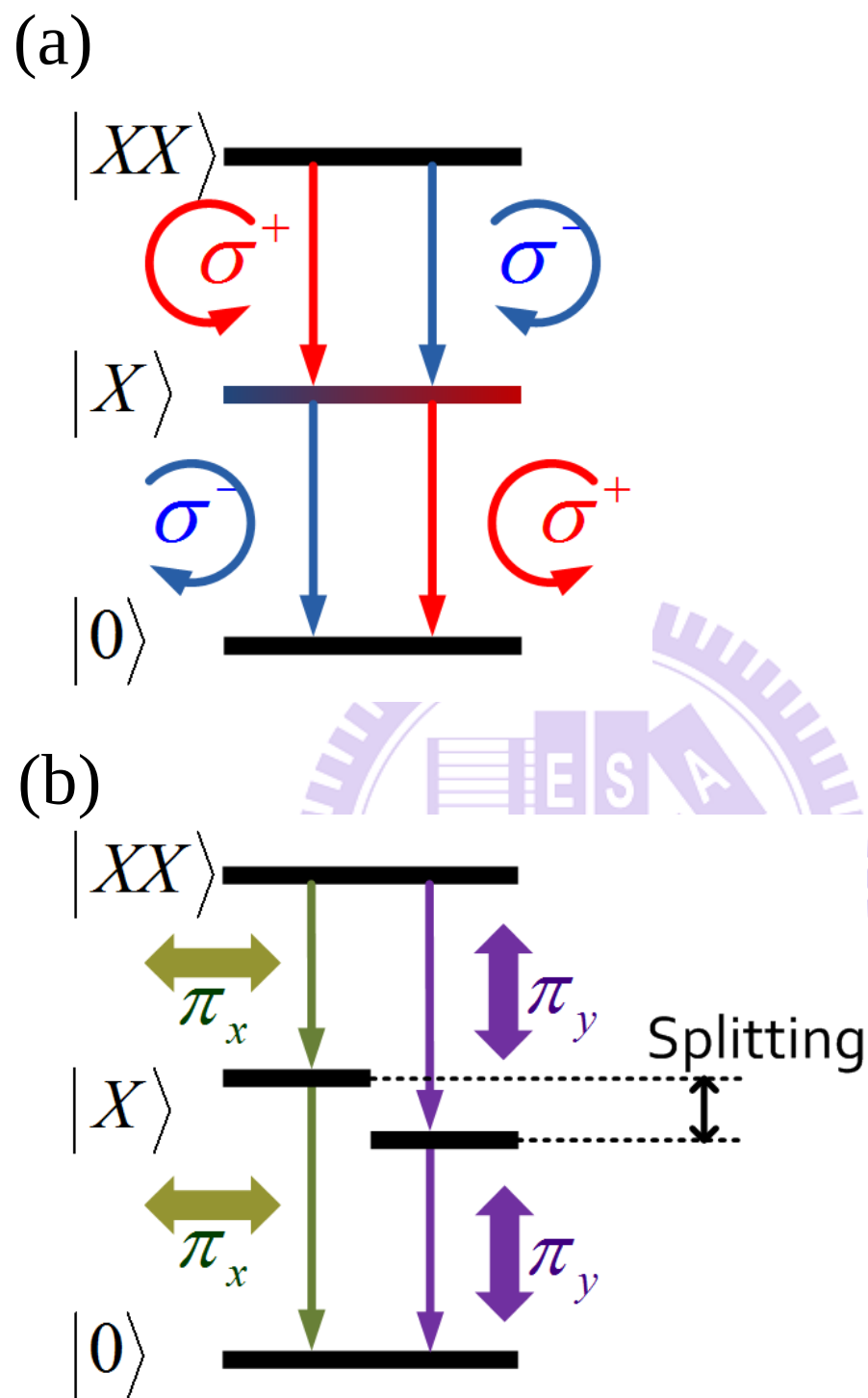
$$\text{斜 } -45 \text{ 度線偏振光 } |\bar{D}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle + |V\rangle)$$

量子點的放光過程，當雙激子先放出水平線偏振光時，激子就會再放出水

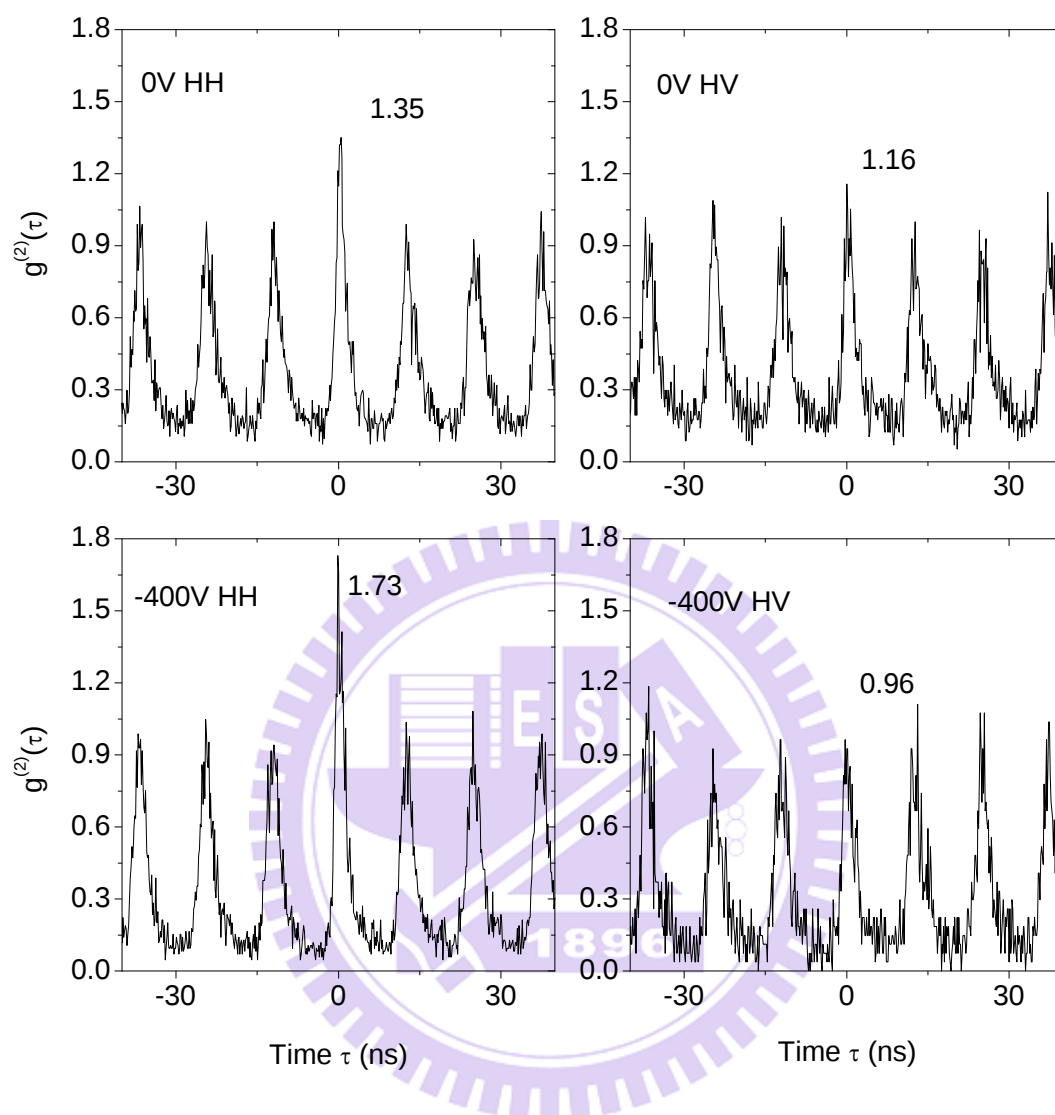
平線偏振光；這個過程我們簡稱為 HH 。而一般有精細結構分裂的量子點，會有 HH 和 VV 的事件。若是精細結構分裂，能夠減少到比激子訊號半寬還小的話，激子將成為兩種偏振的簡併態，同時存在著 $|H\rangle$ 和 $|V\rangle$ 兩種狀態的可能性，而激子和雙激子就有機會互相成為糾纏態。糾纏態的量子點放光過程，將會有 RL 或 LR 、和 DD 或 $\bar{D}\bar{D}$ 這幾種事件存在。

為了要讓激子再變回簡併態，本論文利用了外加不對稱應力的方式，來將激子精細結構分裂減少。而其減少的量，是否能使量子點系統產生糾纏態特性，必須要再量測各種偏振下的激子和雙激子間相干性。實驗使用了 Hanbury-Brown and Twiss (HBT) 干涉儀，並用兩台雪崩式光電二極體來當作光偵測器，使用脈衝雷射(Pulse laser)作為激發光源。光偵測器分別接收激子和雙激子的訊號，並各自在光偵測器前架設偏振晶體、二分之一波片和四分之一波片；只要轉動波片至特定角度，就能讓所需的偏振光通過。

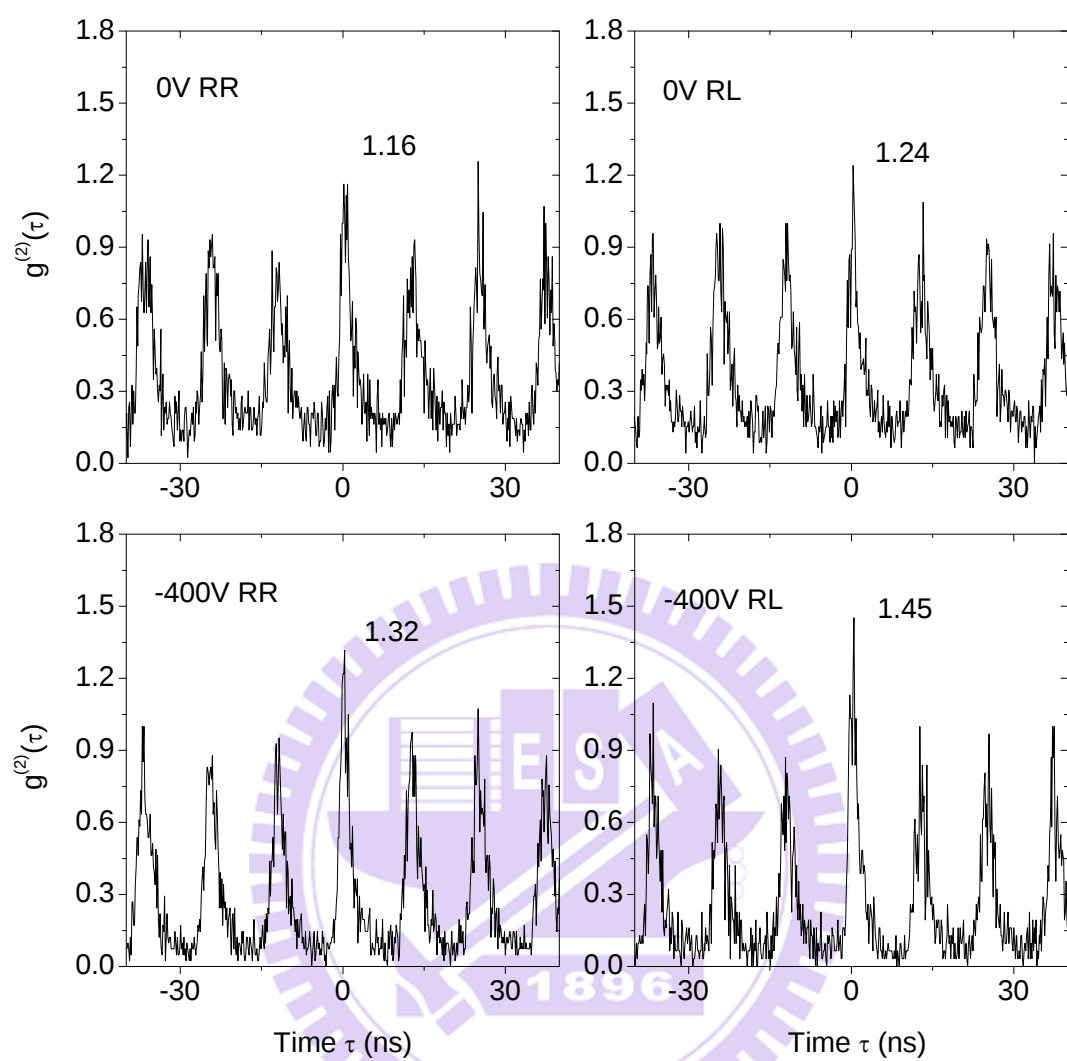
對於單軸應力的元件，為了得知外加應力是否會使量子點產生糾纏態，或是能提高糾纏態的程度；將在兩種偏壓底下，進行六組相干性的量測，分別是 HH 、 HV 、 RL 、 RR 、 DD 和 $\bar{D}\bar{D}$ 的事件。HBT 所量測出事件的相關函數 $g^{(2)}(\tau)$ (Correlation function) 值，若是 $g^{(2)}(\tau) > 1$ 代表此事件發生機率高， $g^{(2)}(\tau) < 1$ 代表此事件發生機率低。根據文獻[21] -[23]，若激子和雙激子互為糾纏態時，將會存在著事件 RL 和 DD ，且事件 RR 和 $\bar{D}\bar{D}$ 將不會發生。所使用的偏壓為 0 V 和 -400 V，其中 -400 V 是能將激子精細結構分裂降到最低的。



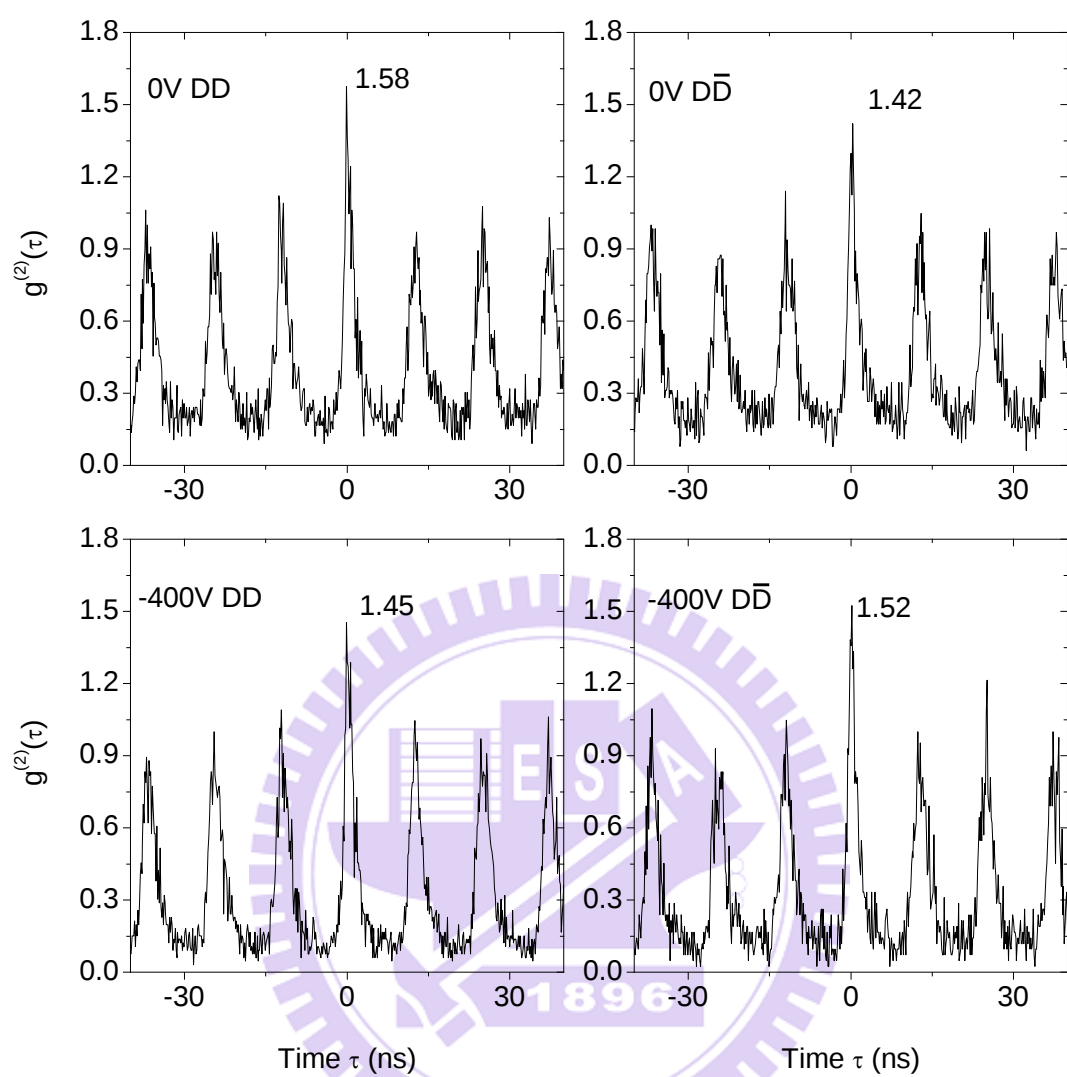
【圖 4-22】 圖(a)為理想狀態下的量子點雙激子系統。圖(b)為實際情形的量子點雙激子系統。



【圖 4-23】 在 0 V 和 -400 V 時，事件 *HH* 和 *HV* 的相干性量測。



【圖 4-24】 在 0 V 和 -400 V 時，事件 *RR* 和 *RL* 的相干性量測。



【圖 4-25】 在 0 V 和 -400 V 時，事件 DD 和 $D\bar{D}$ 的相干性量測。

實驗結果如【圖 4-23】、【圖 4-24】和【圖 4-25】。對於【圖 4-23】的結果，是量測是事件 HH 和 HV 發生的可能性。一般非糾纏態的量子點，都能得到 HH 為 $g^{(2)}(\tau) > 1$ ，和 HV 為 $g^{(2)}(\tau) < 1$ 的結果。但由實驗數據來看， HV 事件的結果為 $g^{(2)}(\tau) \sim 1$ ，代表還是有 HV 的放光路徑存在。對於【圖 4-24】的結果，是量測是事件 RR 和 RL 發生的可能性。在 0 V 時的 RR 和 RL 都為 $g^{(2)}(\tau) \sim 1$ ，但 -400 V 的 RR 和 RL 都為 $g^{(2)}(\tau) > 1$ 。對於【圖 4-25】的結果，是量測是事件 DD 和 $D\bar{D}$ 發生的可能性。而對兩種事件都是 $g^{(2)}(\tau) > 1$ 。

由【圖 4-24】和【圖 4-25】的結果，顯示並無顯著糾纏態的特性存在。可能是所外加的應力，還不足以讓激子的兩種偏振成為簡併態。



第五章 結論

在本論文中，從實驗上所量測砷化銦量子點的顯微螢光光譜，發現激子與雙激子訊號擁有精細結構分裂；激子訊號是由兩道有著微小能量差的光所組成，且之間有著不同的偏振方向。為了降低精細結構分裂的量，將研究激子能階分裂的成因；包含了電子-電洞交換作用、與價電帶混合效應。並模擬出經由以上效應所影響的激子能階結構，有著精細結構分裂與偏振不對稱性的特性存在。其中發現了量子點的應變，會對激子能階、與精細結構分裂造成影響。因此將在實驗中對量子點外加應力，並量測顯微螢光光譜，來觀察激子訊號的變化。

接著嘗試利用壓電材料 PMN-PT 來對量子點外加應力。發現到激子訊號確實會隨著外加應力大小而改變能量；計算外加應變量與能量變化量間的關係，其壓電材料所產生的應力確實都能傳到量子點上。

由高解析度螢光光譜得知，激子精細結構分裂的大小也能靠外加應力來改變。經過模擬和計算可得到理論上的精細結構分裂量，和實驗數據相符合。代表利用外加應力的方式，是有可能將單量子點的激子能態給變成簡併態。

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] M.Z. Maille, E.A. de Andrada e Silva, and L. J. Sham, Phys. Rev. B 47, 15776 (1993).
- [15] 吳朗 ”電子陶瓷：壓電”(1994)
- [16] Andreas Herklotz, Johannes D. Plunhof, Armando Rastelli, Oliver G. Schmidt, Ludwig Schultz, Kathrin Dorr, J. Appl. Phys. 108, 094101 (2010).
- [17] K.K. Rajan, M. Shanthi, W.S. Chang, J. Jin, L.C. Lim, Sens. Actuators A 133 (2007) 110-116.
- [18] M. Shanthi, L. C. Lim, K. K. Rajan, and J. Jin, Appl. Phys. Lett. 92, 142906 (2008).
- [19] S. L. Chuang “Physics of Photonic Devices”, Second Edition, Wiley (2009).
- [20] Ming Gong, Weiwei Zhang, Guang-Can Guo, and Lixin He, Phys. Rev. Lett. 106, 227401 (2011).
- [21] R Hafenbrak, S M Ulrich, P Michler, L Wang, A Rastelli and O G Schmidt, New J. Phys., 9, 315 (2007).

- [22] Robert J Young, R Mark Stevenson, Paola Atkinson, Ken Cooper, David A Ritchie and Andrew J Shields, *New J. Phys.*, 8, 29 (2006).
- [23] Daniel F. V. James, Paul G. Kwiat, William J. Munro, Andrew G. White, *Phys. Rev. A*, 64, 052312 (2001).

