

# 國立交通大學

電子工程學系電子研究所碩士班

碩士論文

量子點光源之二次相關性

Second order correlation of quantum dot  
photon source

研究生：翁思強

指導教授：林聖迪 教授

中華民國 一百零一年 十二月

量子點光源之光子相關性

Photon correlation of quantum dot photon source

研究生：翁思強

Student : Ssu-Chiang Weng

指導教授：林聖迪

Advisor : Dr. Shen-Di Lin

國立交通大學

電子工程學系 電子研究所

碩士論文

A Thesis

Submitted to Department of Electronics Engineering  
College of Electrical Engineering and Computer Science

National Chiao Tung University

in Partial Fulfillment of the Requirements

for the degree of

Master of Science

in

Electronics Engineering

November 2012

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國 一百零一年 十二月

# 量子點光源之光子相關性

學生:翁思強

指導教授:林聖迪博士

國立交通大學電子工程學系電子研究所碩士班

## 摘 要

本論文中 Hanbury Brown Twiss 實驗系統已被架設，並用此系統量測兩種量子點樣品光子輻射的二次相關性函數  $g^{(2)}(\tau)$ 。被限制在金屬光窗的單一量子點存在明顯的反群聚效應，其在低注入雷射功率的狀況下，有最小的  $g^{(2)}(0)$  值為 0.298，接近理想的單光子源，當持續增加注入雷射功率時，因為背景雜訊增加及反群聚時間下降， $g^{(2)}(0)$  值上升；另一個量子點放置在微柱共振腔內的樣品，當量子點激子態與共振腔模態雷射產生共振時，顯現出 Purcell effect 而增加量子點的自發輻射效率，令人感到有趣地，當持續增加注入雷射功率時，量子點與共振腔模態耦合輻射從反群聚效應 ( $g^{(2)}(0) < 1$ ) 轉換成群聚效應 ( $g^{(2)}(0) > 1$ )，對於雷射閾值而言，此轉換過程較一般的強度分析方法更為靈敏，所以量測二次相關性函數可用來檢驗零閾值雷射的閾值。

# Second order correlation of quantum dot photon source

Student : Ssu Chiang Weng

Advisor : Dr. Shen-Di Lin

Department of Electronics Engineering  
College of Electrical Engineering and Computer Science  
National Chiao Tung University

## Abstract

In the thesis, the system of Hanbury Brown- Twiss(HBT) experiment has been setup and tested by measuring the second order correlation function ( $g^{(2)}(\tau)$ ) of photons emitted by two quantum dot (QD) samples. Single quantum dots defined with metal mask exhibit clear anti-bunching behavior. The obtained lowest  $g^{(2)}(0)$  is about 0.298 at low excitation power. With increasing pumping power,  $g^{(2)}(0)$  increases because of increased background noise and reduced anti-bunching time. The other sample, single QDs placed in micro-pillar cavity, shows significant Purcell effect when the resonance between excitonic states of QD and cavity modes occurs. Interestingly, with the increasing pumping powers, the emission of single QDs resonant with cavity mode shows a transition from the anti-bunching behavior ( $g^{(2)}(0) < 1$ ) to bunching behavior ( $g^{(2)}(0) > 1$ ). This transition is more sensitive than the conventional methods so the measurement of  $g^{(2)}(\tau)$  can be used to determine the threshold value of threshold-less lasers.

## 致謝

在兩年半的研究生生涯之中，是我此生最後的學生生涯，充滿著各樣酸甜苦辣的回憶，這些回憶是我以後人生繼續向前走的動力。

首先要感謝我的指導老師林聖迪教授，他不只是一個研究者，還是一個教育家，在我遭遇困難而毫無頭緒的時候，給予我的意見和指導，讓我能夠完成研究也是一個好爸爸、好丈夫，不管在研究上，還是生活待人處世上他都是我榜樣；感謝李依姍學姊和傅英哲學長，在實驗操作和學業上的指導，以及正確積極實驗態度的建立；感謝其他實驗室的同學們，在生活上的幫助；感謝我的家人和好友，在我最艱苦的時候，還是支持著我；最後感謝我的神，謝謝您一路上的帶領。

# 目次

	頁次
中文摘要 .....	I
英文摘要 .....	II
致謝 .....	III
目次 .....	IV
圖目錄 .....	VI
第一章 緒論 .....	1
1.1 單光子介紹 .....	1
1.2 各樣單光子光源介紹 .....	2
1.3 相關論文討論 .....	4
1.4 本論文架構 .....	5
第二章 Hanbury Brown Twiss 干涉儀架設與理論模型建立 .....	6
2.1 二次相關性函數 .....	6
2.2 Hanbury Brown Twiss 干涉儀架設 .....	10
2.2.1 顯微光激螢光光譜實驗架設 .....	11
2.2.2 單光子偵測器 .....	13
2.2.3 HBT 干涉儀 .....	16
2.2.4 資料分析 .....	19
第三章 量子點與微共振腔基礎理論 .....	23
3.1 量子點 .....	23
3.1.1 基本量子點結構與操作原理 .....	24
3.1.2 能量相依關係和速率方程式 .....	25
3.1.3 量子點樣品製造 .....	26
3.2 微共振腔基礎理論 .....	28

3.2.1	微共振腔工作原理.....	28
3.2.2	強耦合效應.....	29
3.2.3	弱耦合效應.....	31
3.2.4	微共振腔種類介紹.....	32
3.2.5	奈米微共振腔樣品製造.....	34
第四章	實驗結果與討論.....	37
4.1	在鋁光窗內的量子點.....	37
4.1.1	強度相依關係.....	38
4.1.2	二次相關性函數.....	42
4.2	在微共振腔中的量子點.....	53
4.2.1	溫度相依關係.....	53
4.2.2	強度相依關係.....	59
4.2.3	二次相關性函數.....	66
第五章	總結.....	78
參考資料	.....	80

## 圖目錄

	頁次
圖 1-1: 量子發射器產生單光子輻射的能階示意圖。.....	2
圖 2-1: $g^{(2)}(\tau)$ 對 $N=1,2,3,4$ 個光子的圖形。.....	7
圖 2-2: 在連續雷射激發下, 各種光源的二次相關性圖形。.....	9
圖 2-3: HBT 實驗設置示意圖。.....	10
圖 2-4: 顯微光激螢光實驗架設示意圖。.....	12
圖 2-5: (a) 黑箱內的實驗架設 Autocad 圖檔;(b) 偵測器的底座設計圖檔; (c) 轉接頭的設計圖檔圖。.....	14
圖 2-6: (a) HBT 實驗光路架設圖。紅色框框為顯微光激螢光實驗區域;(b)黑箱 內 HBT 實驗單光子偵測器和 cage system 連接圖。.....	15
圖 2-7: $\tau$ -SPAD 偵測效率與波長關係圖。.....	17
圖 2-8: SPAD 崩潰發光二次相關性函數圖形, 插入圖為在分光鏡前加上 872 nm 帶通濾鏡使 SPAD 崩潰發光反射到另一個 SPAD 示意圖。.....	17
圖 2-9: 無崩潰發光二次相關性函數圖形, 插入圖為在 SPAD 前加上 872 nm 帶通濾鏡使 SPAD 崩潰發光不會反射到另一個 SPAD 示意圖。.....	18
圖 2-10: 崩潰發光程度降低時二次相關性函數圖形, 插入圖為將分光鏡前的 872 nm 帶通濾鏡旋轉使 SPAD 崩潰發光不會完全入射到另一個 SPAD 示意圖。.....	18
圖 2-11: 經由數學軟體去模擬捲積產生的效果圖形。.....	20
圖 2-12: 系統解析度與 $g^{(2)}(0)$ 的關係。.....	20
圖 2-13: (a)HBT 實驗原始數據。(b)標準化後數據。(c)用捲積公式做曲線擬合。	21
圖 2-14: 當 $g^{(2)}(0)=0$ 時, 有背景參數的二次相關性函數與 $\rho$ 的關係圖。.....	22
圖 3-1: 在 CW 雷射下基本的量子點操作原理。.....	24
圖 3-2: 量子點結構示意圖。.....	26

圖 3-3: 鋁光窗蝕刻流程。.....	27
圖 3-4: 微圓盤共振腔的 SEM 圖形。.....	32
圖 3-5: 二維六角堆積的二維光子晶體[10]。.....	33
圖 3-6: 微柱共振腔的 SEM 圖形(交大電子所李依姍學姊所拍攝)。.....	34
圖 3-7: 微柱共振腔的平面結構圖形。.....	35
圖 3-8: 微柱共振腔的製程步驟。.....	36
圖 4-1: 各種不同形狀的奈米孔洞。.....	37
圖 4-2: Hole A 在不同雷射功率之下積分 3 秒後, PL 強度與波長之關係圖。...	39
圖 4-3: Hole A 譜線積分強度與注入雷射功率相依關係。.....	39
圖 4-4: Hole B 在不同雷射功率之下積分 3 秒後, PL 強度與波長之關係。.....	41
圖 4-5: Hole B 譜線積分強度與注入雷射功率相依關係。.....	41
圖 4-6: (a) Hole A 在 $0.5 \mu W$ 之下積分 500 秒之後標準化的二次相關性函數 與延遲時間的關係圖; (b) $g^{(2)}(0)$ 與偵測到的每秒 counts 數關係圖。...	43
圖 4-7: Hole A 加上帶通濾鏡之後, 積分時間 3 秒, 注入雷射 $1 \mu W$ 的 PL 強度 與波長關係圖。.....	44
圖 4-8: Hole A 取 $929.55 \text{ nm}$ 譜線(QD <sub>1</sub> X)在不同雷射功率之二次相關性圖形。.....	45
圖 4-9: Hole B 加上帶通濾鏡之後, 積分時間 3 秒, 雷射功率 $1 \mu W$ 的 PL 強度 與波長關係圖。.....	46
圖 4-10: Hole B 在 $913.63 \text{ nm}$ 譜線(QD <sub>1</sub> X)在不同雷射功率之二次相關性圖形。.....	47
圖 4-11: Hole A 和 Hole B 二次相關性函數零點擬合值 $g^{(2)}(0)^f$ 與注入雷射功率的 關係圖。.....	49
圖 4-12: Hole A 和 Hole B 反群聚時間 $\tau_a$ 與注入雷射功率的關係圖。.....	49
圖 4-13: 量子點三能階的速率模型。.....	50
圖 4-14: Hole A 加上帶通濾鏡之後, 積分時間 3 秒, 注入雷射 $1 \mu W$ 的 PL 強度 與波長關係圖。.....	52
圖 4-15: Pillar A 在不同溫度時積分 3 秒的 PL 強度與溫度關係圖。.....	54

圖 4-16: Pillar A (a) 量子點與共振腔模態不同溫度其波長的變化;(b) 量子點與共振腔模態不同溫度其半高寬的變化。.....	55
圖 4-17: Pillar A 量子點與共振腔模態不同溫度其譜線積分強度的變化。.....	56
圖 4-18: Pillar B 在不同溫度時積分 3 秒的 PL 強度與波長關係。.....	57
圖 4-19: (a) Pillar B 量子點 QD 與共振腔模態 C 不同溫度其波長的變化;(b) 量子點與共振腔模態不同溫度其半高寬的變化。.....	58
圖 4-20: Pillar B 量子點與共振腔模態不同溫度其譜線積分強度的變化。.....	59
圖 4-21: Pillar A 在 4 K 下，不同注入雷射功率下的 PL 強度與波長關係圖。...	60
圖 4-22: Pillar A 在非共振溫度 4 K 下不同波長譜線的雷射功率與譜線積分強度關係。.....	61
圖 4-23: Pillar A 在 20 K 下，不同雷射功率下的 PL 強度與波長關係圖。.....	61
圖 4-24: Pillar A 在共振溫度 20 K 下量子點與共振腔模態耦合時雷射功率與譜線積分強度關係。.....	62
圖 4-25: Pillar B 在 4 K 下，不同注入雷射功率下的 PL 強度與波長關係圖。...	63
圖 4-26: Pillar B 在 4 K 下不同波長譜線的注入雷射功率與譜線積分強度關係圖。...	64
圖 4-27: Pillar 在溫度 23.5 K 下，不同注入雷射功率下的 PL 強度與波長關係圖。...	65
圖 4-28: Pillar B 在 23.5 K 下量子點與共振腔模態耦合時雷射功率與譜線積分強度關係圖。.....	65
圖 4-29: Pillar A 加上帶通濾鏡之後，注入雷射功率 $0.5 \mu\text{W}$ 的 PL 強度與波長關係圖。.....	67
圖 4-30: Pillar A 在共振溫度 20 K 下，單位時間為 33 ps，積分 500 秒，不同雷射功率下量測到的二次相關性函數圖形。.....	68
圖 4-31: Pillar A 在共振溫度 20 K 下， $g^{(2)}(0)$ 與注入雷射功率的關係圖，黑色方塊為實驗值 $g^{(2)}(0)^d$ ; 紅色圓點是數據擬合值 $g^{(2)}(0)^f$ 。.....	69

圖 4-32: Pillar B 加上帶通濾鏡之後，注入雷射功率 $0.5 \mu\text{W}$ 的 PL 強度與波長關係。.....	70
圖 4-33: Pillar B 在共振溫度 $23.5 \text{ K}$ 下，不同雷射功率下量測到的二次相關性函數圖形。.....	71
圖 4-34: Pillar B 在共振溫度 $23.5 \text{ K}$ 下， $g^{(2)}(0)$ 與注入雷射功率的關係圖，黑色方塊 $g^{(2)}(0)^d$ ; 紅色圓點是數據擬合值 $g^{(2)}(0)^f$ 。.....	72
圖 4-35: (a) Pillar A 在不同雷射功率下半高寬變化圖。(b) Pillar B 在不同雷射功率下半高寬變化圖。.....	73
圖 4-36: Pillar A 與 Pillar B，反群聚時間(群聚時間)與注入雷射功率的關係圖。	74
圖 4-37: Pillar A 在 $1 \mu\text{W}$ 共振腔模態半高寬與溫度的關係。.....	76
圖 4-38: Pillar A 在溫度 $4 \text{ K}$ 下，不同雷射功率下量測到的二次相關性函數圖形。.....	76
圖 4-39: Pillar B 在溫度 $4 \text{ K}$ 下， $g^{(2)}(0)$ 與注入雷射功率的關係圖。.....	77

# 第一章 緒論

近年來量子通訊[1]和量子密碼學[2]被廣泛的研究，這些研究的前提要必須能夠產生糾纏光子對(entangled photon pair)[3]，而使能產生糾纏光子對的單光子源(single photon source)如量子點也被廣泛地研究，本論文目的在於架設並量測量子點光子是否有單光子的特性，這必須建立 Hanbury Brown-Twiss 干涉儀來量測偵測器中兩個光子彼此的相關機率程度，也就是二次相關性函數(second order correlation function)，從二次相關性函數我們能了解光源之間的群聚性(bunching)，是否有反群聚(anti-bunching)現象，分辨光源是否為單光子光源、同調光源或熱輻射光源。

## 1.1 單光子介紹

單光子光源(single photon souce)[4]是一種自然界中較難出現的光源狀態。單光子光源在特定時間間隔之內，只會發射出一個光子，此外單光子的訊號非常的微弱，也因此使其一般偵測器無法偵測。Hanbury Brown-Twiss 干涉儀是一種專門量測出單光子的實驗裝置。儀器原理為用一個 50/50 的分光鏡將入射光分裂成兩道光束並且分別進入兩個單光子偵測器。當其中一個偵測器測到光子時，儀器內部會開始計時，而當另一個偵測器也偵測到光子時會結束計時，並且得到一段延遲時間(delay time)的計數(counts)。重複上述動作，最後將可得到一個延遲時間為 0 也不會產生計數的數據，此時即可斷定其為單光子。

要產生單光子可以從單量子發射器(single quantum emitter)中取得單一躍遷輻射。單一原子、單一分子、單缺陷或是單一量子點都可以成為量子發射器。從單量子發射器產生單光子產生的機制如圖 1-1，在不連續能階的材料中，電子吸收外部能量而激發(excitation)到高能階，經過快速能量釋放(如聲子)到激發態 $|e\rangle$ ，最後輻射出一個光子回到基態 $|g\rangle$ 。

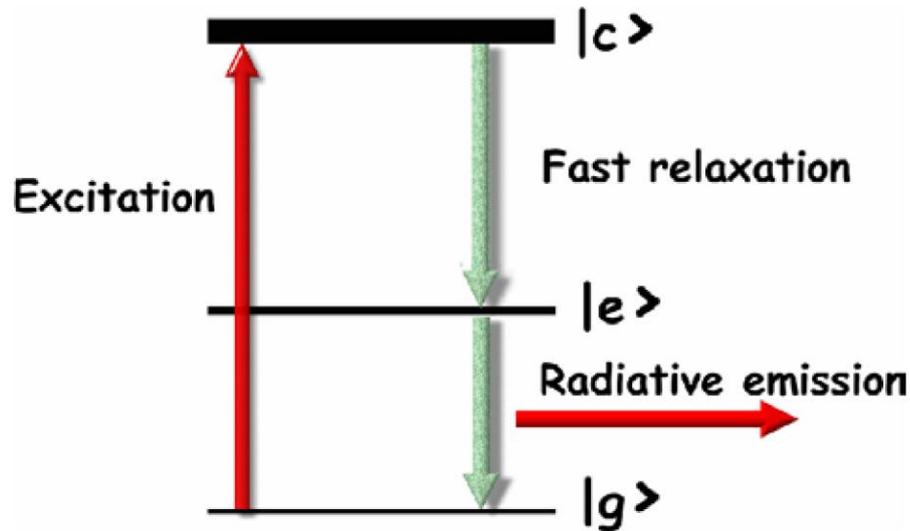


圖 1-1:量子發射器產生單光子輻射的能階示意圖。

## 1.2 各樣單光子光源介紹

在 1977 年 Kimble 用 Na 原子束觀察到第一個單光子反群聚現象[5]，他們觀察到從原子束產生的自發性輻射在 HBT 實驗圖形中，於延遲時間為 0 時產生一個凹陷谷底，以單原子當作單光子源的優點是完全的不可分辨性。不像固態材料發射器，每個原子的發射性質皆相同，被隔絕的原子發射同調長度(coherence length)被傅立葉限制。其缺點就是要做一個隔絕的單原子裝置相對十分困難。

單分子的螢光也會有反群聚現象[6]。單分子作為單光子源的優點為在室溫的可操作性。當其埋在低折射率材料之中，用高倍率顯微物鏡捕捉其螢光，可以達到高光萃取效率(light extraction)及光蒐集效率。其分子輻射波段從紫外光到紅外光，但是其缺點是發光性質不穩定。

雖然有很多種材料產生的缺陷都會發光，目前幾種缺陷可以做為單光子源[7]，其中一種為鑽石中的氮缺陷(nitrogen-vacancy)中心，其發射光的中心波長在 637 nm 且寬度為 120 nm。另一種缺陷是單碳接收子(single-carbon acceptors)在 GaAs 中也可以發射出單光子，其波長為 790 nm。氮缺陷中心的優點為波長穩定和可一次性製造大量缺陷中

心於元件上。缺點是輻射的生命期太長，大約 10 ns 左右，限制了最大的單光子發射效率。

數種自組成(self-assembled)量子點皆已認定為合適的單光子源[8]，用不同的材料參數，即可以調整光子輻射的波長。單光子在單量子點中是經由濾掉其他激子的譜線，留下一條激子或雙激子的譜線作為單光子源使用。量子點的基本性質會在第三章作深入討論。量子點的優點為其量子輻射效率非常高，三五族的量子點可以用半導體的製程技術輕易製造，並可以放入 PN 接面用來電激輻射，也可放入微共振腔中與共振模態耦合放大其發光效率或是控制其輻射生命期。單光子最重要的缺點就是只能在低溫之下操作，約 40 K 以下，其萃取效率也是較其他單光子源低。

### 1.3 相關論文討論

#### 單光子二次相關性函數實驗架設

在 1956 年，Robert Hanbury Brown 和 Richard Q. Twiss 出版一個新類型的恆星天狼星干涉儀(stellar interferometer on Sirius)測試[9]，他們用兩個光電倍增管 (PMT)，相隔約 6 公尺，分別針對天狼星蒐集光源。光電倍增管使用探照燈反射鏡從收集到的光，兩個強度之間的觀察到的干擾效果，揭示在兩個信號之間存在正相關，儘管事實上，沒有收集到任何相位信息。他們用這些干擾信號來確定小天狼星的視角的大小，並宣稱有出色的解析度。它們架設的干涉儀在後續研究做為觀察粒子間相關性機率，在量子光學和粒子物理都有後續發展，此實驗用他們的名字取名為 Hanbury Brown-Twiss 實驗。

#### 量子點作為單光子源研究與討論

量子點作為單光子源有很多幾個優點，它們具有高振子強度(high oscillator strengths)和窄光譜線寬，也不會有光漂白(photobleaching)或擱置(shelving)現象，生長量子點所用的材料也與成熟的半導體技術相容，使量子點可以與其他元件做整合，但是

從高折射率的半導體逃逸出光子的效率很低，解決的方法之一是將量子點放進光學共振腔即可增加自發輻射效率。

很多半導體微共振腔可用來增加量子點的自發輻射效率，像是微盤共振腔(micro-disk)的回音壁模態(whispering-gallery modes)[10]，二維光子晶體的缺陷模態[11]和蝕刻布拉格反射鏡(DBR)的微柱共振腔(micro-pillar)。從微柱共振腔基態雷射逃逸出的光可以近似為高斯光束，可以有效地與其他光纖、光偵測器或光學元件耦合。

Pelton 等人使用單量子點放置在微柱共振腔中[12]，使量子點的輻射效率提高 5.8 倍，因此，83 % 的量子點輻射光被耦合進微共振腔單模模態，主要是這些逃逸光逃進一個單模、類高斯(Gaussianlike)行進波，使外部量子效率可以達到約 38% 的效率。這種高效率使在進行 HBT 實驗時，能更有效偵測到單光子源產生計數，使積分時間更快，不受背景光源影響。高效率的單光子光源將會對量子密鑰分配(quantum key distribution)產生益處。現有的單光子源效率很低，導致若超過合理的距離，會因通道損耗、壓縮和累積的光子源不穩定而限制安全密鑰傳送率(secure-key transmission rate)。

### 微共振腔雷射與量子點耦合光子群聚性變化

Nomura 等人將自組式砷化鎵銻量子點上層加入光子晶體雷射[13]，因為使用超低密度的量子點樣品，每一個光子晶體中間平均只含 0.4 個量子點，在一個光子晶體中單一量子點容易與其他量子點隔絕。在共振溫度下，單一量子點譜線與共振模態耦合，因為 Purcell Effect 而使發光效率提升。當注入功率在 42 nW 時，雷射到達閾值(threshold)，從自發性輻射開始進行相位轉換，失諧(detuning)狀態非常明顯，直到注入功率到大約 145 nW 之下，從開始同調性雷射。光子二次相關性函數量測結果，表示在還沒到閾值以前光子反群聚現象明顯， $g^{(2)}(0) < 1$ ，越發接近雷射閾值時， $g^{(2)}(0)$  慢慢增加，過渡到  $g^{(2)}(0) = 1$  的同調性光子泊松(Poissonian)分布，到閾值  $g^{(2)}(0) > 1$ ，最後慢慢接近回到 1。

## 1.4 本論文結構

本論文主要談論量子點的二次相關性函數性質，因量子點為一種單光子源，而要證明光源為單光子源就必須用二次相關性函數來判斷，而量子點若與微共振腔耦合共振時，微共振腔雷射也會使得二次相關性函數發生變化，這些變化的原因就是本篇論文主要的內容。所以在第一章時先介紹單光子的基本特性，還有各種單光子源，在第二章時談論如何用二次相關性函數分辨光源是否為單光子源，以及架設 Hanbury Brown-Twiss 干涉儀與資料分析；在第三章時討論量子點的基本特性和其樣品製造，還有微共振腔基礎理論與其樣品製造，第四章實驗內容就是對於在鋁光窗的量子點和微共振腔內的量子點做強度相依關係、溫度相依關係和二次相關性函數的實驗分析，並且討論兩者之間二次相關性函數的差異性。



## 第二章 Hanbury Brown-Twiss 干涉儀架設與理論模型建立

### 2.1 二次相關性函數

二次相關性函數 $g^{(2)}(\tau)$ 是最重要的量測參數，證明一種光源是否真的發射出單光子，其可證明光源存在反群聚現象 $g^{(2)}(0) = 0$ 並且評價其是否為名副其實的單光子源，在數學上來說，光子的反群聚效應可以用電場  $E(r,t)$ 的二次相關性函數(Second order correlation functions)來描述，一個標準化的電場二次相關性函數來定義成：

$$g^{(2)}(t_1) = \frac{\langle E(r_1, t_1)E^*(r_1, t_1)E(r_2, t_2)E^*(r_2, t_2) \rangle}{\langle E(r_1, t_1)E^*(r_1, t_1) \rangle \langle E(r_2, t_2)E^*(r_2, t_2) \rangle} \quad (2.1)$$

上式的  $t_2=t_1+t'$ ，此量是在兩個不同空間、時間位置電場之間相關性的度量。在我們 HBT 實驗的情況下，有兩個不同的光偵測器，此式即可化簡為：

$$g^{(2)}(t) = \frac{\langle I(t)I(t+t') \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \quad (2.2)$$

假設偵測到光強度 $\langle I \rangle$ 是由  $N$  個單光子發射器(single photon emitter)的光強度( $i$ )所組成，而這些發射出的光在統計上都是可分辨的，

$$\langle I \rangle = N \langle i \rangle \quad (2.3)$$

這時光強度關性函數可寫成：

$$\langle I(t)I(t+t') \rangle = \langle \sum_{j=0}^N i_j(\vec{r}_j, t) \rangle \langle \sum_{k=0}^N i_k(\vec{r}_k, t+t') \rangle \quad (2.4)$$

假設這些單光子發射器之間沒有互相影響也互不相關的話，式(2.2)簡化成：

$$g^{(2)}(t) = \frac{(N^2-N)}{N^2} + \frac{N\langle i(t)i(t+t') \rangle}{N^2\langle i \rangle^2} \quad (2.5)$$

其中，第二項來自於  $N$  個單光子發射器的強度相關性，第一項來自於總合剩餘的  $N^2-N$  項。單光子發射器的強度可以用每單位時間發射光子機率  $p$  和與位置相關的效率項  $\eta$  的積來表示：

$$\langle i \rangle = \eta p(t) \quad (2.6)$$

將其導回式(2.5)並且假設量子點光源並無與位置相關，我們得到

$$g^{(2)}(t) = \frac{N(N-1)}{N^2} + \frac{1}{N} \frac{\langle p(t)p(t+t') \rangle}{\langle p \rangle^2} \quad (2.7)$$

在解出一連串的矩陣計算之後和假設其為穩態激發(continuous mode)之後[14]，

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{N-1}{N} + \frac{1}{N} (1 - e^{-|\frac{\tau}{\tau_a}|}) \quad (2.8)$$

此時 $\tau_a$ 為量子點激發態生命期，又可稱做反群聚時間，對式(2.8)繪出  $g^{(2)}(\tau)$  對  $N$  個光子的圖形[24]可得圖 2-1，由式(2.8)和圖 2-1 可知道當延遲時間為 0 時，1 個光子的二次相關性函數：

$$g^{(2)}(0) = 0 \quad (2.9)$$

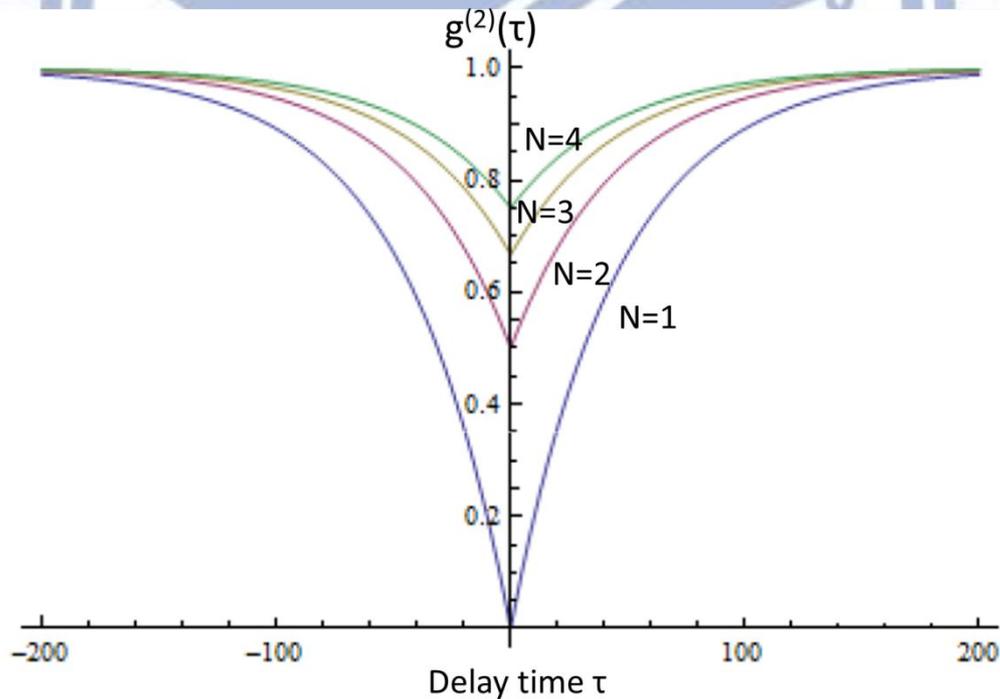


圖 2-1:  $g^{(2)}(\tau)$  對  $N=1,2,3,4$  個光子的圖形。藍色線為 1 個光子，紅色線為兩個光子，黃色線為 3 個光子，綠色線為 4 個光子[14]。

二次相關性函數可以分辨不同類型的光場，從式(2.9)可知理論上單光子源(N=1)的二次相關性函數 $g^{(2)}(0) = 0$ ，而其他類型的光場，如同調性光源(coherent light)

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle \alpha | \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a} | \alpha \rangle}{\langle \alpha | \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) | \alpha \rangle^2} = 1 \quad (2.10)$$

其中 $\hat{a}^\dagger, \hat{a}$ 為電場，平均光子數目 $\langle \alpha \rangle = \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$ ，而熱輻射光源的二次相關性函數為

$$g^{(2)}(0) = 1 + \frac{(\Delta n)^2 - \langle n \rangle}{\langle n \rangle^2} = 2 \quad (2.11)$$

其中 $\langle n \rangle$ 為平均光子數目， $\Delta n$ 為光子數目變化量，從以上式子可以清楚地從同調光源或熱輻射光源中分辨單光子源只要量測到 $g^{(2)}(0) < 1$ ，而實際上只要量測到 $g^{(2)}(0) < \frac{1}{2}$ 就了解有 $n=1$ 的單光子態存在。圖 2-2 為在連續雷射激發下，各種光源的二次相關性圖形，中間的虛線為同調性光源(如雷射)的二次相關性圖形，其平均光子數的變化量 $\Delta n$ 等於平均光子數 $\langle n \rangle$ ，其統計上的光子數量分布為常態性的帕松分布(Poissonian distribution)， $g^{(2)}(0) = 1$ ，最上面的點狀線為熱輻射光源的二次相關性圖形，其平均光子數的變化量 $\Delta n$ 大於平均光子數，其統計上的光子數量分布為超帕松分布(Super-poissonian distribution)， $g^{(2)}(0) > 1$ ，光子產生群聚現象，平均光子數目 $g^{(2)}(0) = 2$ ；最下面實線為單光子源的二次相關性圖形，其平均光子數的變化量 $\Delta n$ 小於平均光子數 $\langle n \rangle$ ，其統計上的光子數量分布為次帕松分布(Sub-poissonian distribution)，光子產生反群聚現象， $g^{(2)}(0) < 1$ 。

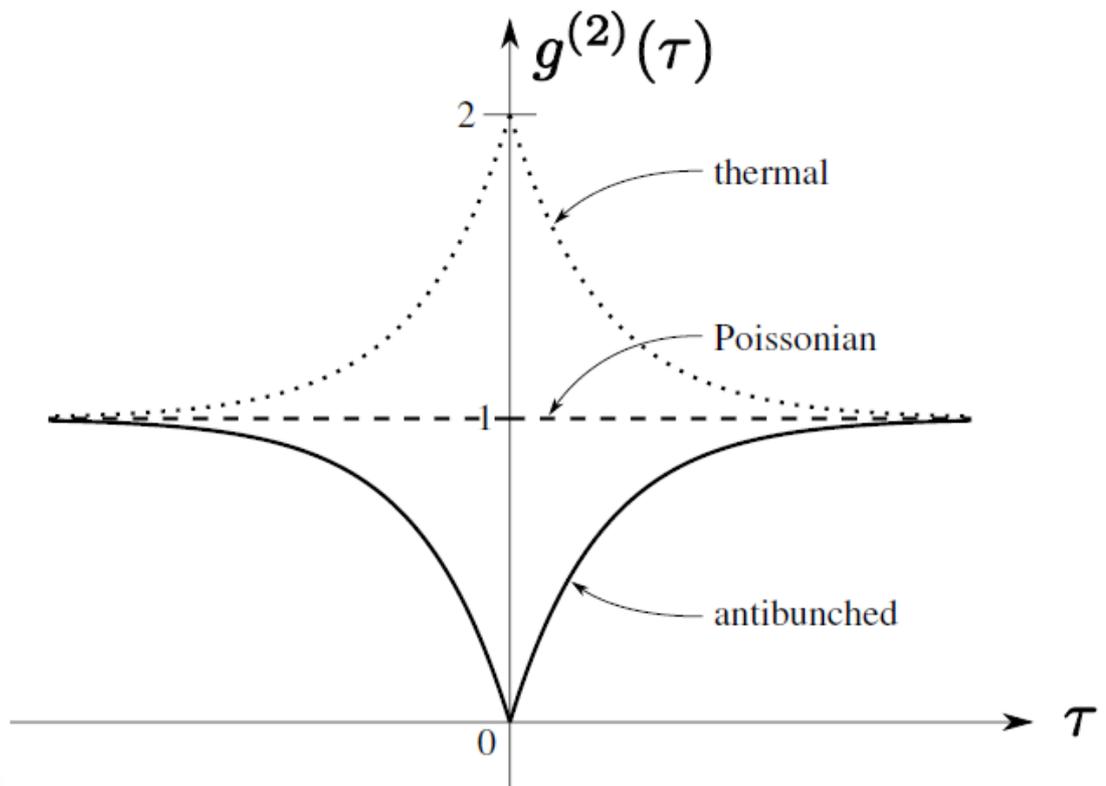


圖 2-2: 在連續雷射激發下，各種光源的二次相關性圖形，最上面點狀線為熱輻射光源，中間虛線為同調性光源，下面實線為單光子源。



## 2.2 Hanbury Brown Twiss 干涉儀架設

我們的 Hanbury Brown-Twiss (HBT)干涉儀系統架設是在原有的顯微螢光光譜實驗系統(micro PL)的後端加入 Hanbury Brown-Twiss 干涉儀，使得單一量子點的螢光光譜可以先在顯微螢光光譜實驗系統被確認，在進入單光儀(monochromator)前端，加上可翻折的反射鏡，進入 HBT 系統，在進行光子干涉實驗，其光路必須高度校正，使訊號光路精準的打入 HBT system 的單光子偵測器感光元件上面，在儀器架設本身必須做詳細的設計。圖 2-3 為 HBT 實驗設置示意圖：

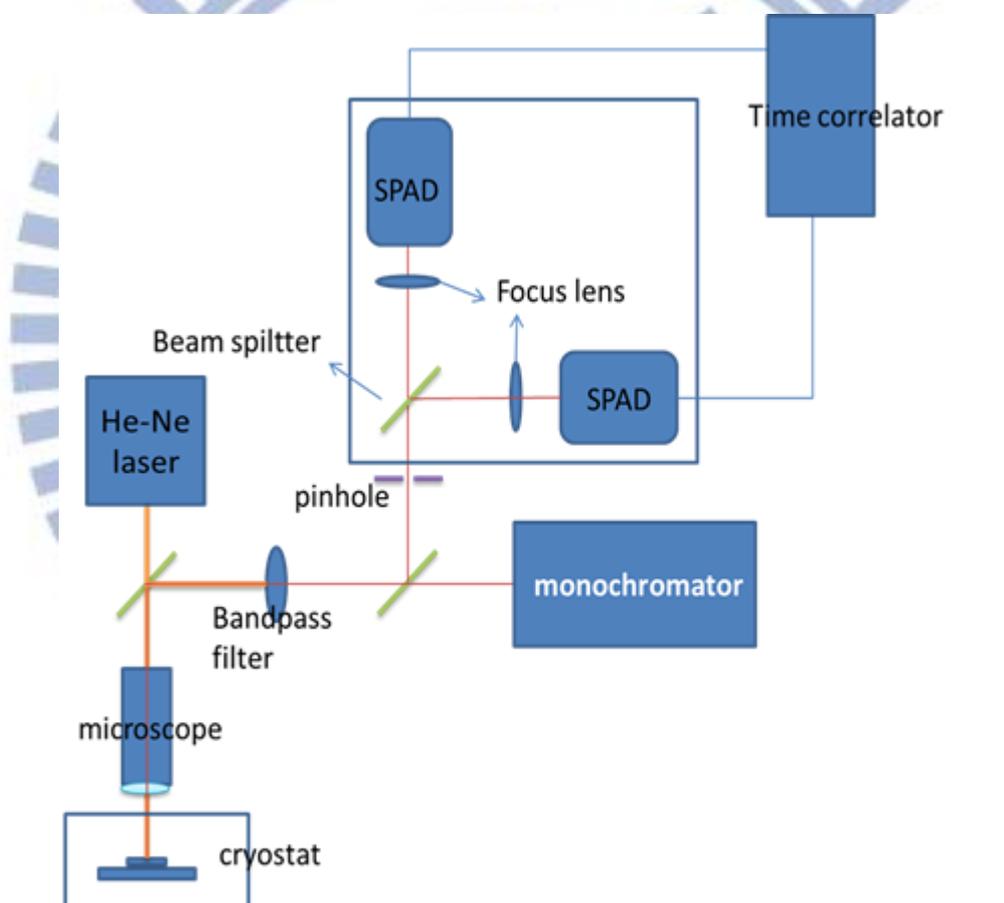


圖 2-3: HBT 實驗儀器設置示意圖。

## 2.2.1 顯微光激螢光(Micro-PL)光譜實驗架設

要找到單一量子點譜線，必須對樣品上的奈米孔徑光窗作顯微光激螢光頻譜量測，找出含有單一量子點的孔洞，進一步才能進行二次相關性函數量測。顯微光激螢光頻譜實驗如圖 2-4 所示，該系統分為兩部分，監控系統和量測系統，當汞燈(Lamp)和攝影機(CCD)前面的分光鏡(beam splitter)翻摺進入光路時，雷射和汞燈打到樣品表面反射回攝影機成像，即可在電腦螢幕(monitor)觀察樣品表面的影像和雷射聚焦情形，在調整樣品基座上的前後左右位置和顯微物鏡的上下位置，就可以將雷射聚焦到所選的光窗，這時將分光鏡翻摺下去，在光路上置放高通濾鏡(longpass filter)將雷射光濾掉，樣品光源就進入單光儀(monochromator)內，經過光柵分光，樣品發出的訊號就會由單光儀後端的電荷耦合元件(CCD)接收，在電腦讀出螢光光譜。

所需實驗裝置如下：

1. 雷射光源：氦氖雷射(He-Ne laser)，波長 632.8 nm，作為激發光源使用。
2. 白光光源：用以成像至電荷耦合元件，觀察樣品表面孔徑位置。
3. 物鏡(objective):100 倍物鏡，數值孔徑為 0.5，用以聚焦雷射。
4. 光譜儀(TRIAX 550)：用以選取特定波長的光，焦距為 75 公分，光柵密度為 1200g/mm。
5. Si-CCD (SPEC-10:100)：成像陣列為 1340 x 100 個像素，像素大小為 20 x 20 $\mu\text{m}$ ，用以量測光譜強度。

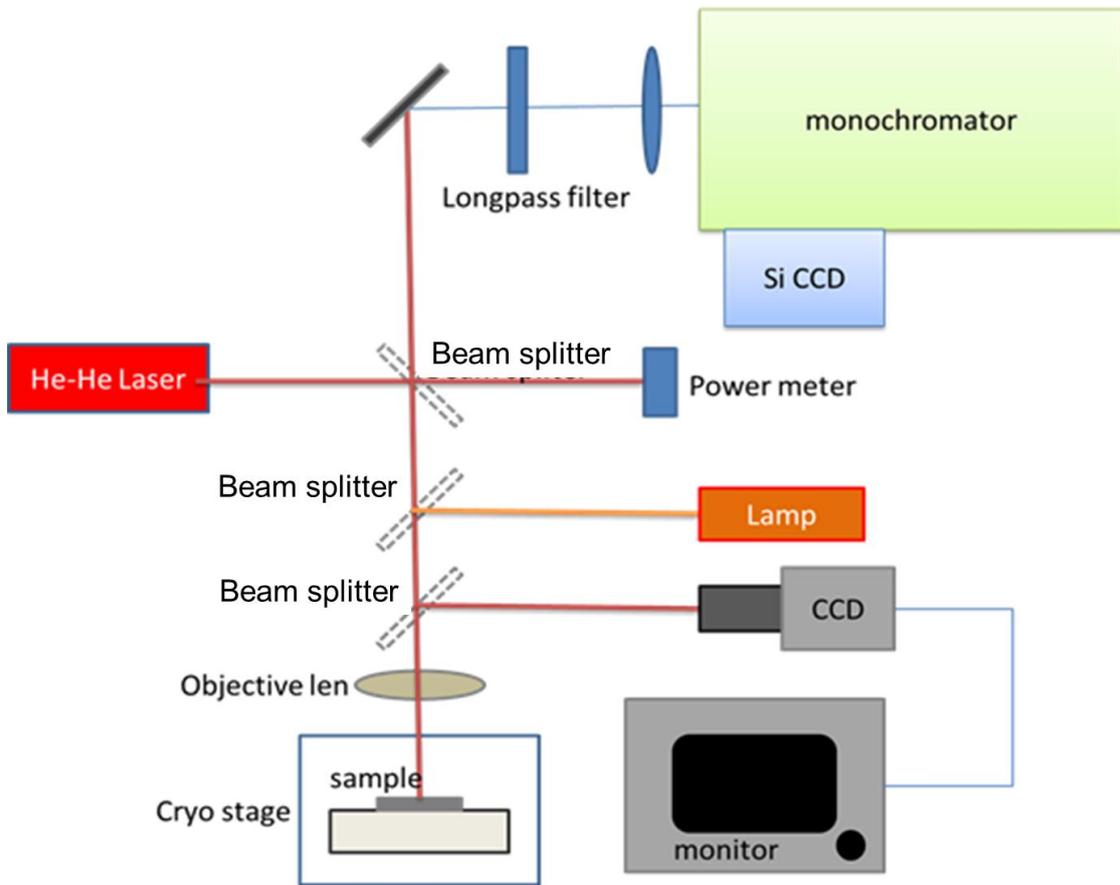


圖 2-4: 顯微光激螢光實驗架設示意圖。

## 2.2.2 HBT 干涉儀

要進行光子間的干涉，量出二次相關性函數  $g^{(2)}(\tau)$ ，就必須要有一個分光鏡，將進入的光子束分離成兩條路徑，每一條路徑的終端設置光偵測器偵測分離的光子，因為單光子的量測，光偵測器的能力是可以敏感到連一個光子都能偵測到的單光子偵測器 (single photon counting modules SPCM)，因單光子偵測器的靈敏度非常高，背景光源的雜訊易影響實驗結果，儀器設置的想法為將 HBT 裝在可移動式的黑箱內，而非固定在光學桌上，可依據實驗需求來移動，黑箱體積不能太大，而黑箱內的實驗架設 Autocad 圖檔如圖 2-5(a)，HBT 各儀器用籠狀系統(cage system)來連接，確保進入的光路與儀器保持水平，籠狀系統是以四根不銹鋼條為支柱，連接分光鏡跟單光子偵測器，利用籠狀系統專用的載座(mount)，使可調式光圈的中心與單光子偵測器的主動區對準，因單光子偵測器本身無可跟籠狀系統連接的接口，必須自己設計訂做轉接頭連接，因為單光子偵測器的主動區很小，轉接頭設計必須非常精準，使光路可以精準地打入主動區，以下是轉接頭的設計圖檔圖 2-5(b)和偵測器的底座設計圖檔圖 2-5(c)，用轉接頭將籠狀系統跟單光子偵測器連接之前，必須在兩個偵測器前面裝設可以 xyz 三軸移動的聚焦鏡 (focus lens)，可以做細部的光路對準，再將所有的儀器固定在黑箱內，除了留一個可調半徑的光圈作為樣品光源進入孔外，確保實驗不受其他背景光源所影響，與顯微光激螢光實驗的光路連結部分，就是在進 HBT 分光鏡前，總共有兩個可調式光圈，這兩個光圈因為四根不銹鋼條連結而互相平行，只要雷射的光路同時對準這兩個光圈，就表示光路與 HBT 實驗系統在同一水平面上，完成初步對準，所有的光路完成對準之後，在將兩台單光子偵測器連接到電腦上的時間相關器(time correlator)的開始端與結束端，本實驗架設所用的時間相關器是 Picoquant 公司的 timeharp 200，最小時間解析度可到 33 ps，主要用來分析訊號的延遲，當開始端有一個訊號產生時，相關器開始計時，等到結束端接受到訊號，結束計時記錄秒數，產生一個計數，等待下一個開始和結束，最後產生一個開始-結束計數與時間延遲的柱狀圖，一般用來作為時間解析光激螢光實驗的研究，去分析樣品光源與雷射光源的延遲性，本研究作為二次相關性函數的分析，只要圖形做

標準化就可以得到二次相關性函數的圖形，實際的實驗架設如圖 2-6。

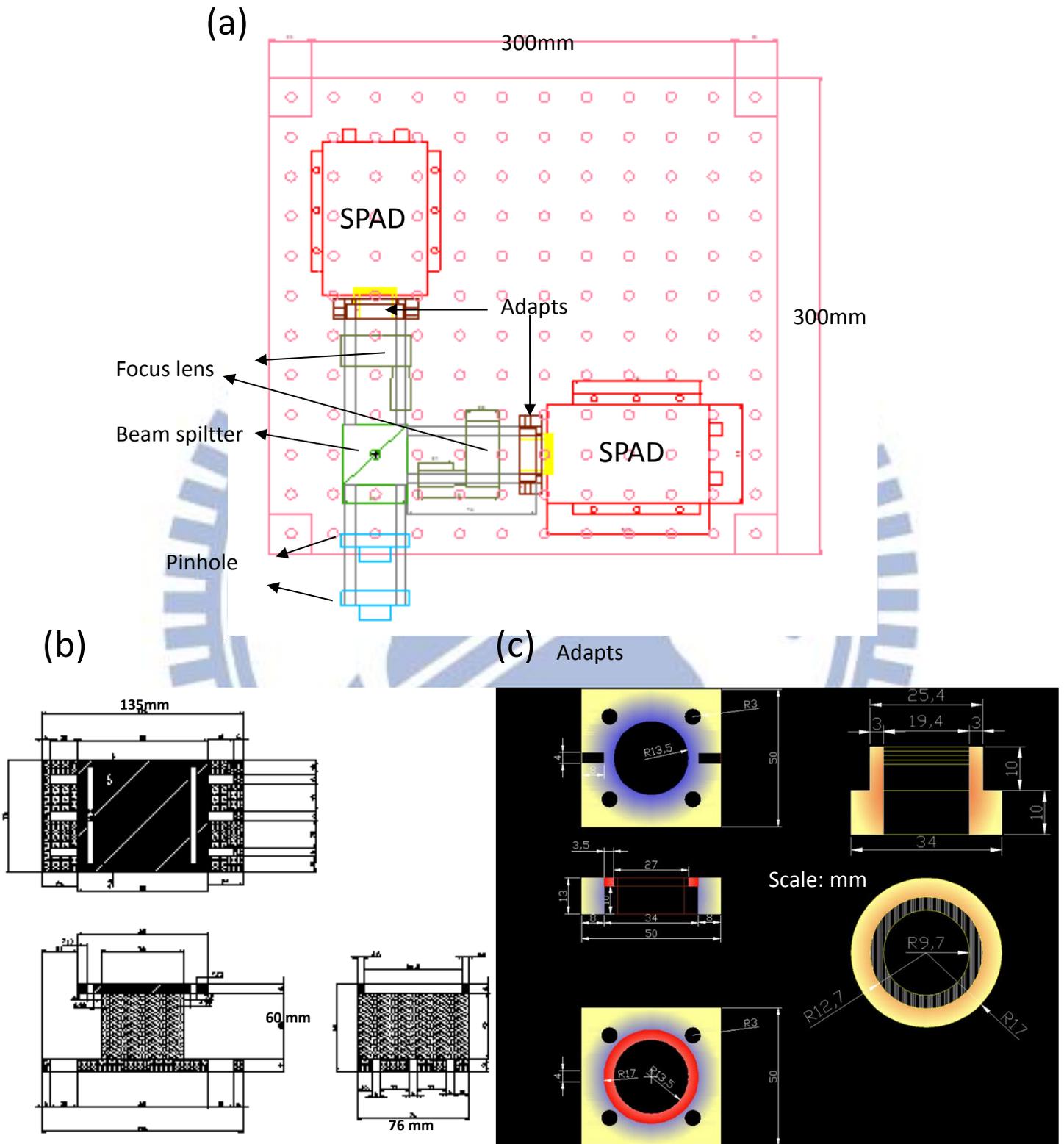


圖 2-5: (a) 黑箱內的實驗架設 Autocad 圖檔;(b) 偵測器底座設計圖檔;(c) 轉接頭設計圖檔圖。

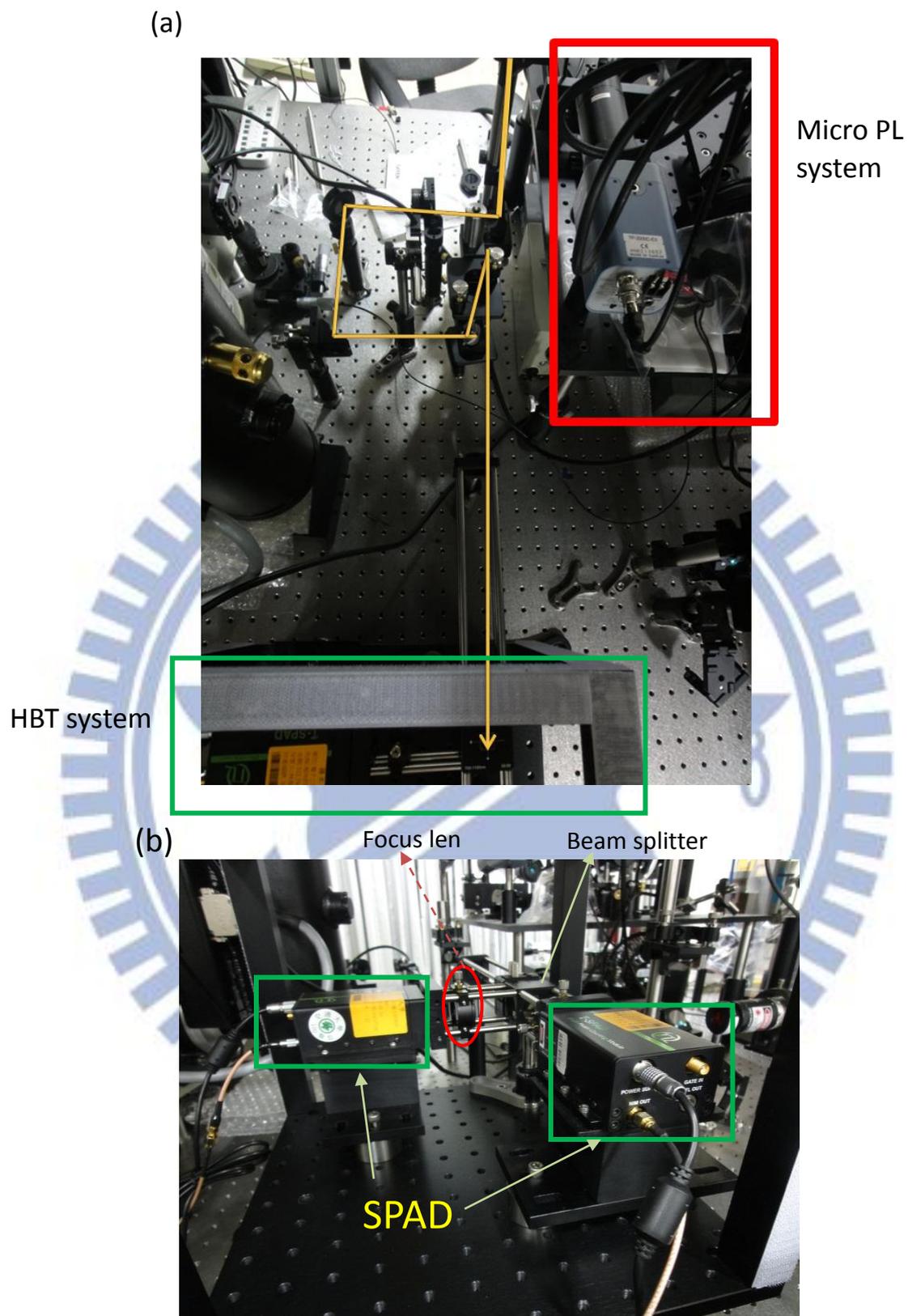


圖 2-6: (a) HBT 實驗光路架設圖。紅色框框為顯微光激螢光實驗系統；綠色框框為 HBT 系統，光路從顯微光激螢光實驗系統經過四個反射鏡後進入 HBT 系統(b)黑箱內 HBT 實驗單光子偵測器和籠狀系統連接圖，單光子偵測器經由轉接頭與籠狀系統的四根鐵柱與分光鏡連接，在偵測器與分光鏡中間有三軸自由度聚焦鏡。

### 2.2.3 單光子偵測器(single photon counting modules)

我們實驗所用的單光子偵測器(single photon counting modules)是 PicoQuant 的矽材雪崩型光電二極體( $\tau$ -SPAD),其光偵測效率如圖 2-7,在波長 900 nm 時偵測效率大約為 30%,時間解析(半高寬)大約為 350 ps,主動區的面積為  $150 \times 150 \mu\text{m}^2$ ,停滯期(dead time)小於 70 ns,其特色為其暗計數(dark count)非常低,實際測量一秒中只有 27 個暗計數。

有兩點該注意的地方,第一就是崩潰發光(breakdown flash),第二就是停滯期。在近紅外線的崩潰發光是電子串流(electron cascade)所造成,這對實驗會產生非常不好的影響,因為崩潰發光會隨著光路穿透 SPAD 前面的分光鏡,被針孔(pinhole)後面的濾鏡反射回分光鏡,再入射到 HBT 實驗中的另一個 SPAD 上,為了證明崩潰發光的影響,我們將 872 nm 的脈衝雷射導入 HBT 裝置,其脈衝週期為 100 ns,讓實驗在脈衝模式(pulsed mode)下進行,並在針孔後面加上一個 872 nm 的帶通濾鏡,只讓雷射通過,如圖 2-8 插入圖,一般而言,雷射的  $g^{(2)}(0)=1$ ,在脈衝模式下,只有在每 100 ns 才會有 counts 產生,在非週期的延遲時間不會有 counts 產生,如圖 2-9,但是雷射使 SPAD 產生崩潰發光,並且進入光路到另一個 SPAD 之中,使二次相關性圖形在非週期的延遲時間還是有 counts 產生,如圖 2-8 時間延遲的零點左右 10 ns 處有半高寬較寬的波包,就是崩潰發光產生的光子時間延遲現象,在雷射功率 250 nW 時,已看不到原本雷射週期光子群聚產生的相關性,被崩潰發光所覆蓋;而我們若在其中一個 SPAD 前加裝只有讓雷射通過的帶通濾鏡,如圖 2-9 插入圖,這時 SPAD 崩潰發光不會進入另一個 SPAD 產生汙染,這時二次相關性圖形就不會受崩潰發光影響,在每一個脈衝週期時產生 counts,如圖 2-9,實際做量子點光源量測時,因量子點波長不固定,我們無法在 SPAD 前面加裝特定量子點波長專用的濾鏡,只能用另一種方式使崩潰發光影響降低,因崩潰發光主要是來自帶通濾鏡的反射,只要把 filter 轉一個角度,崩潰發光就不會直接入射到另一個 SPAD,使汙染減少,如圖 2-10 的插入圖,這時在雷射注入強度為 900 nW 時還觀察不到崩潰發光現象,要等雷射功率到變小到 150 nW 時,崩潰發光現象才會比較明顯,如圖 2-10。第二個現象停滯期會使 SPAD 在偵測到光子之後,有一段時間不會在偵測到任何光子,停滯時間越長,會使實際偵測效率降低,所以好的單光子偵測器停滯期不能太高。

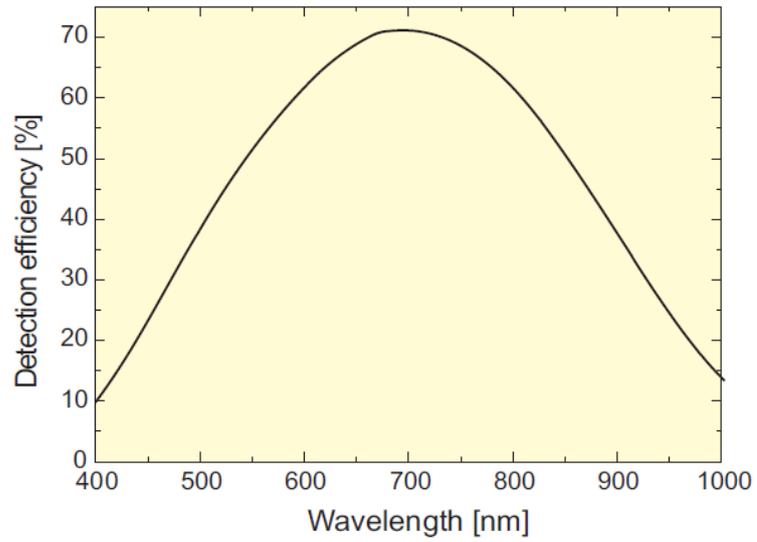


圖 2-7:  $\tau$ -SPAD 偵測效率與波長關係圖。[ $\tau$ -SPAD 說明書]

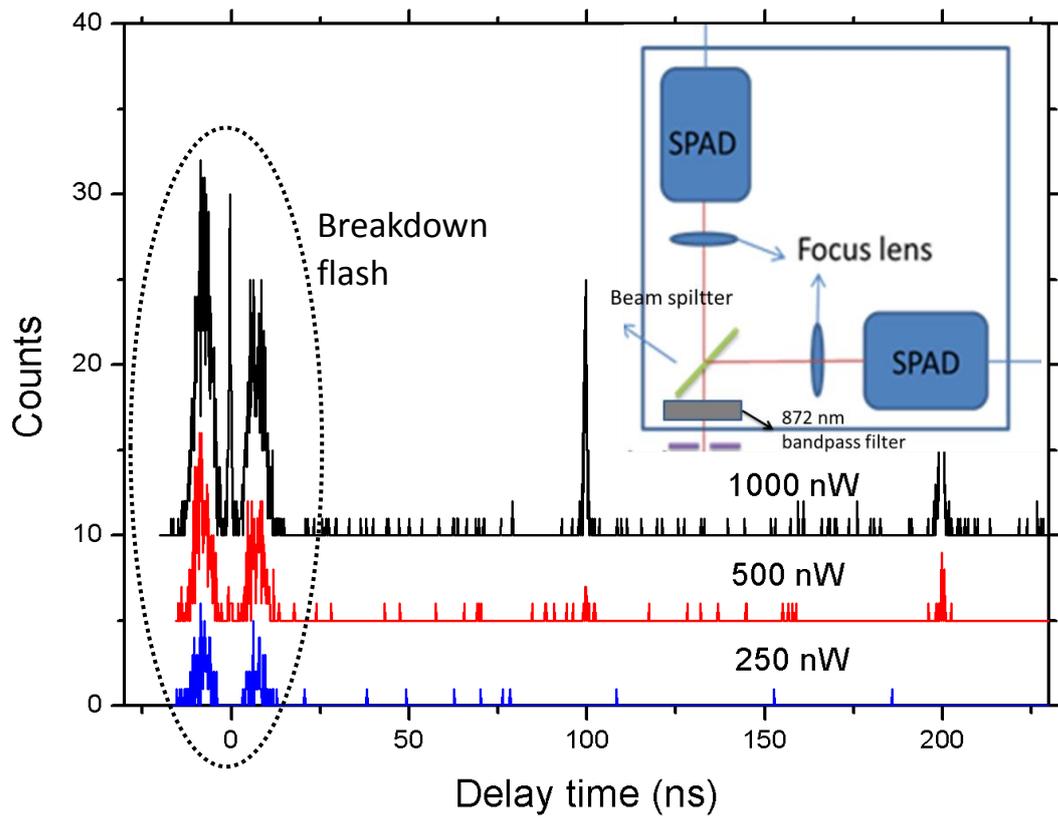


圖 2-8: SPAD 崩潰發光二次相關性函數圖形，插入圖為在分光鏡前加上 872 nm 帶通濾鏡使 SPAD 崩潰發光反射到另一個 SPAD 示意圖。

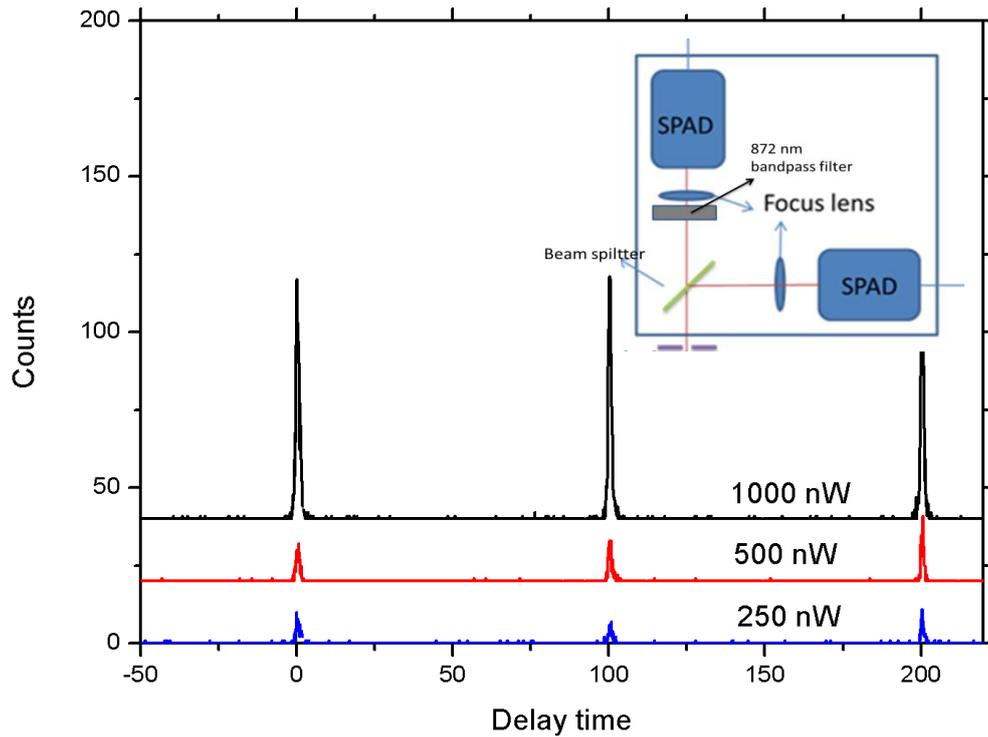


圖 2-9: 無崩潰發光二次相關性函數圖形，插入圖為在 SPAD 前加上 872 nm 帶通濾鏡使 SPAD 崩潰發光不會反射到另一個 SPAD 示意圖。

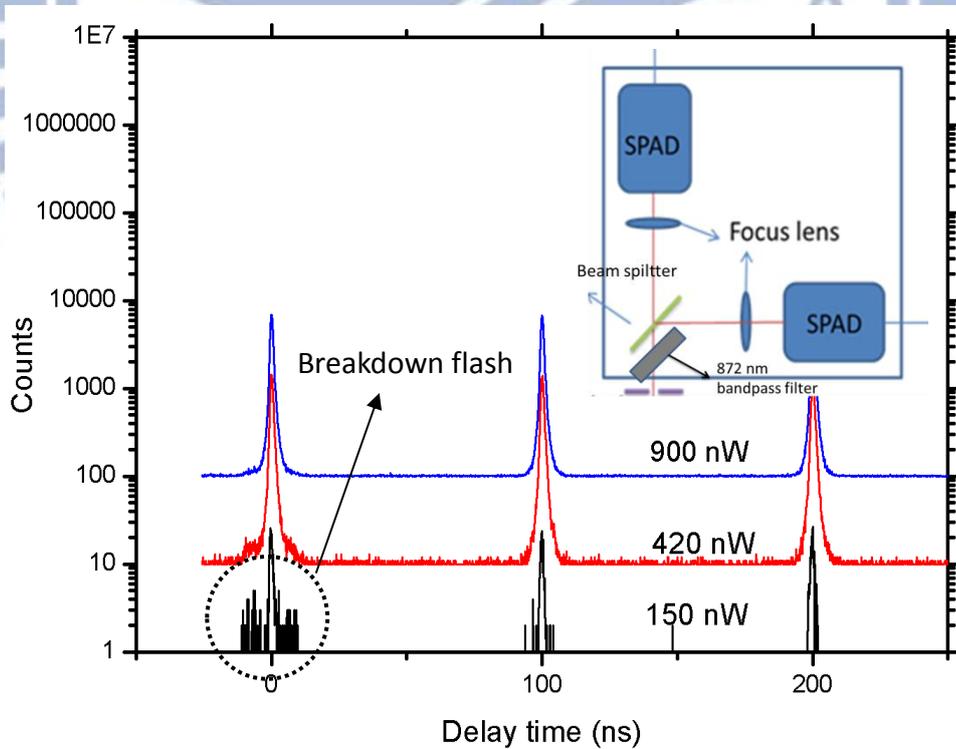


圖 2-10: 崩潰發光程度降低時二次相關性函數圖形，插入圖為將分光鏡前的 872 nm 帶通濾鏡旋轉使 SPAD 崩潰發光不會完全入射到另一個 SPAD 示意圖。

## 2.2.4 資料分析

在注入的雷射是連續激發模式(CW mode)之下，單光子源產生的二次相關性函數圖形可以寫成

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + ae^{-|\tau|/\tau_a} \quad (2.12)$$

當  $a < 0$  時， $g^{(2)}(0) = 1 + a < 1$ ，表示光源產生反群聚現象，當  $a > 0$  時， $g^{(2)}(0) = 1 + a > 1$ ，表示光源產生群聚現象，一般而言分析 HBT 的資料主要就是將開始-結束計數與延遲時間的柱狀圖做標準化，在用上式做回歸分析萃取出反群聚時間  $\tau_a$ 。

### HBT 時間解析度更正

實際上式(2.12)並非完全精確，因為時間相關器產生的柱狀圖的時間解析度不是無限小，而是有最小的時間解析度  $w$ (33 ps)作為一個位元(bins)，產生有限位元組成的圖形，我們並不是真正量測到二次相關性函數本身，而是二次相關性函數與位元特性函數(式 2.12)的捲積(convolution)

$$b(t) = \begin{cases} 1 & |t| \leq w/2 \\ 0 & |t| > w/2 \end{cases} \quad (2.13)$$

將其與(2.12)作代數轉換之後

$$G^2(\tau) = (g^2 \star b(\tau)) = \begin{cases} 1 - \frac{a\tau_a}{w} e^{-\frac{|\tau|}{\tau_a}} \left( e^{-\frac{w}{2\tau_a}} - e^{\frac{w}{2\tau_a}} \right) & |t| \leq w/2 \\ 1 + \frac{2a\tau_a}{w} - \frac{a\tau_a}{w} e^{-\frac{w}{2\tau_a}} \left( e^{\frac{|\tau|}{\tau_a}} + e^{-\frac{|\tau|}{\tau_a}} \right) & |t| > w/2 \end{cases} \quad (2.14)$$

此捲積的效應會使反群聚程度降低也就是  $g^{(2)}(0)$  值上升，此模型還不完全精確，因為還有另一個因素使解析度更為降低，也就是單光子偵測器 SPAD 的抖動(jitter)  $t_j \geq 350$  ps，比時間相關器的解析度還要差，因為 HBT 實驗中共有兩個偵測器，各自偵測器的抖動互不相關，因此總和的抖動  $T_j = \sqrt{2}t_j \geq 495$  ps，實際上 HBT 的解析度就變成  $W = w + T_j = \sqrt{2}t_j \geq 518$  ps，而是也只是理論上最高解析度，實際上的解析度會因為光路有無對準主動區而變化，超過 1000 ps 也是有可能的，圖 2-11 是經由數學軟體去

模擬捲積產生的效果圖形，一個反群聚時間為 1 的理想單光子光源( $g^{(2)}(0)=0$ )為藍色細虛線，圖 2-11 紅色粗虛線在  $w=518$  ps 時  $g^{(2)}(0)$  只有 0.119，圖 2-11 黃色點虛線在  $w=800$  ps 時  $g^{(2)}(0)$  及上升至 0.176，圖 2-12 是系統解析度與  $g^{(2)}(0)$  的關係，從圖中可知當系統解析度大於 1.5 ns 時， $g^{(2)}(0)$  會超過 0.3，這是對於一個理想的單光子源來做模擬，系統解析度太差會到對實驗圖形產生極大失真。

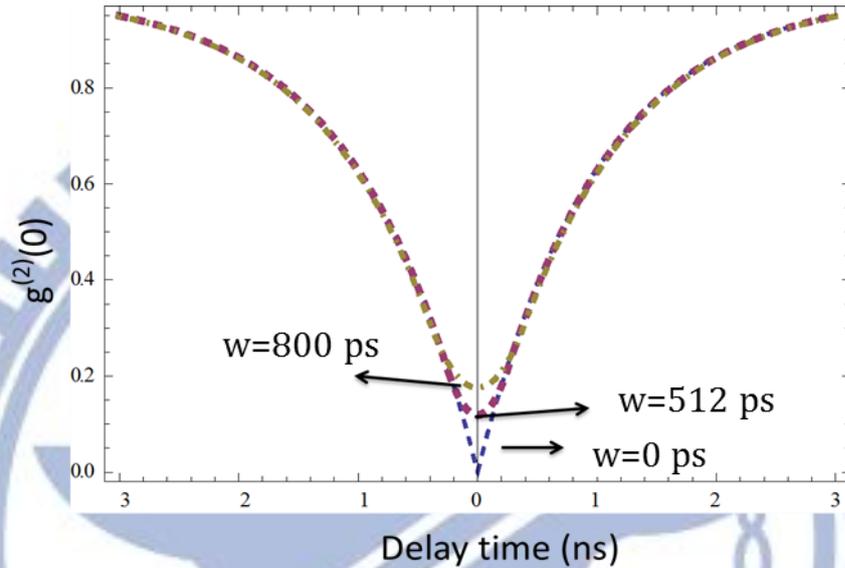


圖 2-11: 經由數學軟體去模擬捲積產生的效果圖形。藍色細虛線為  $w=0$  ps 時  $g^{(2)}(\tau)$  函數；紅色粗虛線為  $w=512$  ps 時  $g^{(2)}(\tau)$  函數；黃色點虛線為  $w=800$  ps 時  $g^{(2)}(\tau)$  函數。

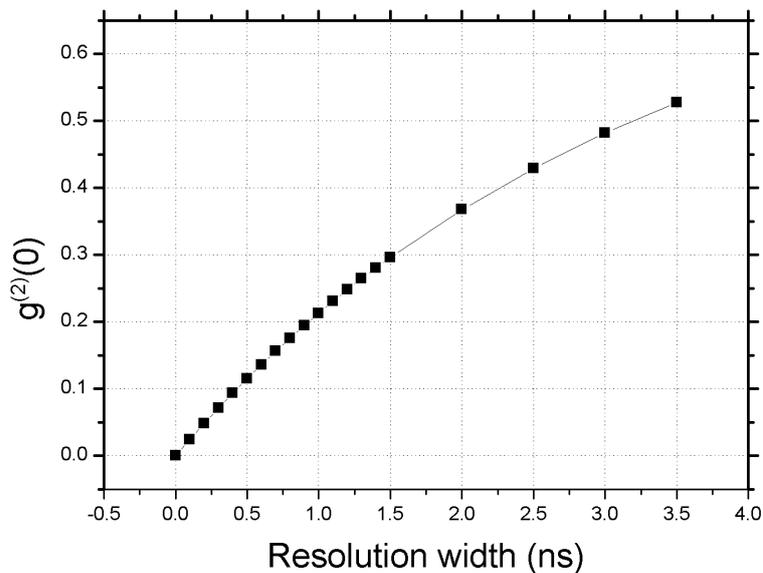


圖 2-12: 系統解析度與  $g^{(2)}(0)$  的關係。

### 卷積公式曲線擬合

得到實驗數據之後，要進行曲線擬合，圖 2-13(a)為 HBT 實驗原始數據，有以下幾個步驟：

1. 對延遲時間大於 10 ns 的數據做水平線擬合，得背景的平均計數值 264.361。
2. 將所有數據除以平均計數值 264.361，將背景值做標準化，得圖 2-13(b)。
3. 用卷積公式(2.14)做曲線擬合，如圖 2-13(c)，即完成曲線擬合。

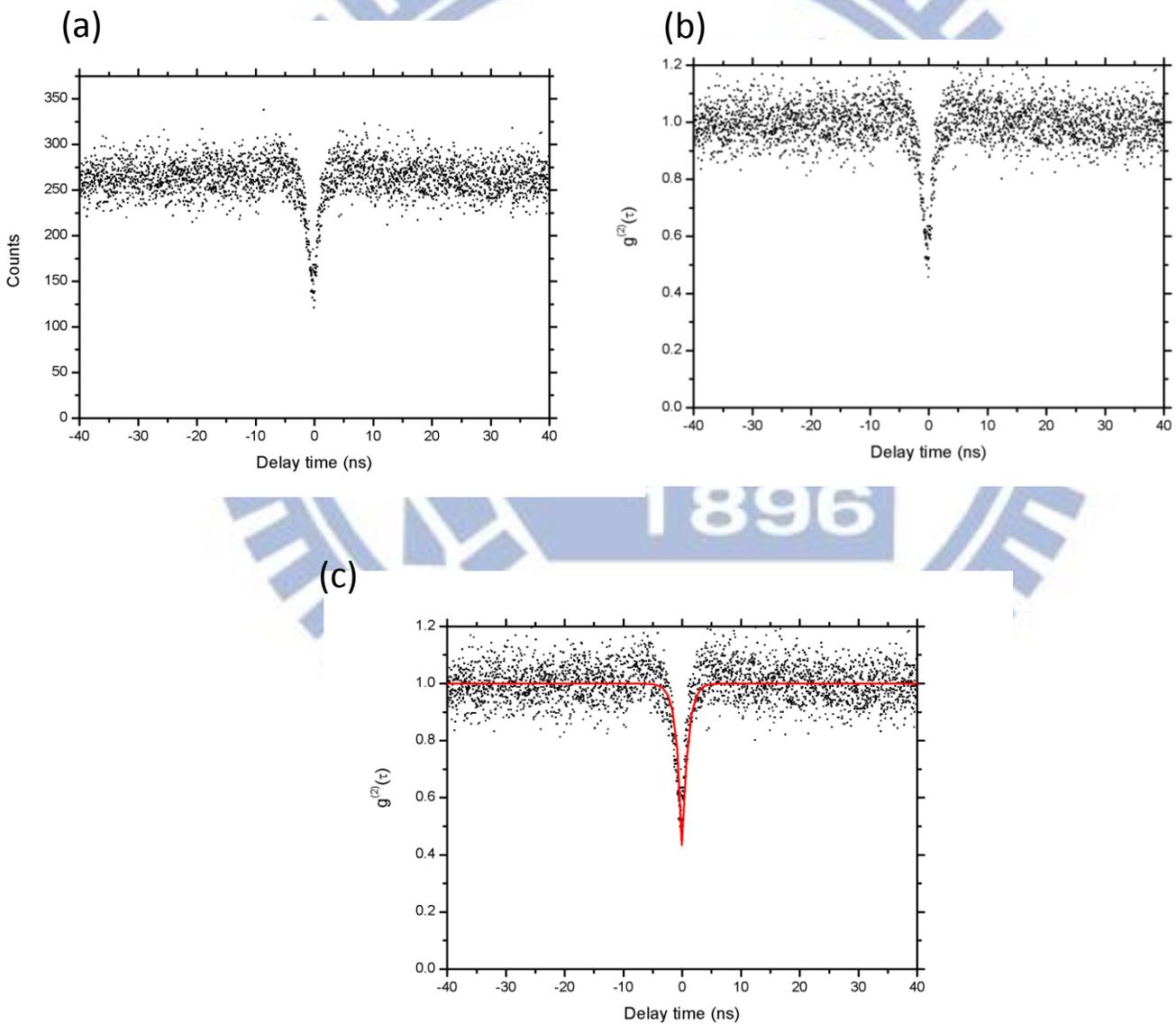


圖 2-13: (a) HBT 實驗原始數據。(b) 標準化後數據。(c) 用卷積公式做曲線擬合。

## 背景(background)去除

另一個會影響相關性函數柱狀圖的參數是背景光源，像是外界光源、SPAD 的暗計數、宇宙射線、量子點的聲子增寬輻射(phonon-broadened emission)、微共振腔的共振腔輻射等等，皆會使  $g^{(2)}(0)$  值上升，減少反群聚現象。背景光源的光子數目分布通常皆為帕松分布，一個帕松分布的光源  $g^{(2)}(0)=1$ ，其  $\rho = S/(S+B)$ ， $S$  為訊號強度， $B$  為背景強度。這時加入背景參數的二次相關性函數為

$$g_b^{(2)}(\tau) = 1 + \rho^2 [g^{(2)}(\tau) - 1]$$

圖 2-14 為當  $g^{(2)}(0)=0$  時，有背景參數的二次相關性函數與  $\rho$  的關係圖，而背景修正過後的  $g^{(2)}(0)$  值就可以由上式得知

$$g^{(2)}(0) = \frac{g_b^{(2)}(0) - (1 - \rho^2)}{\rho^2}$$

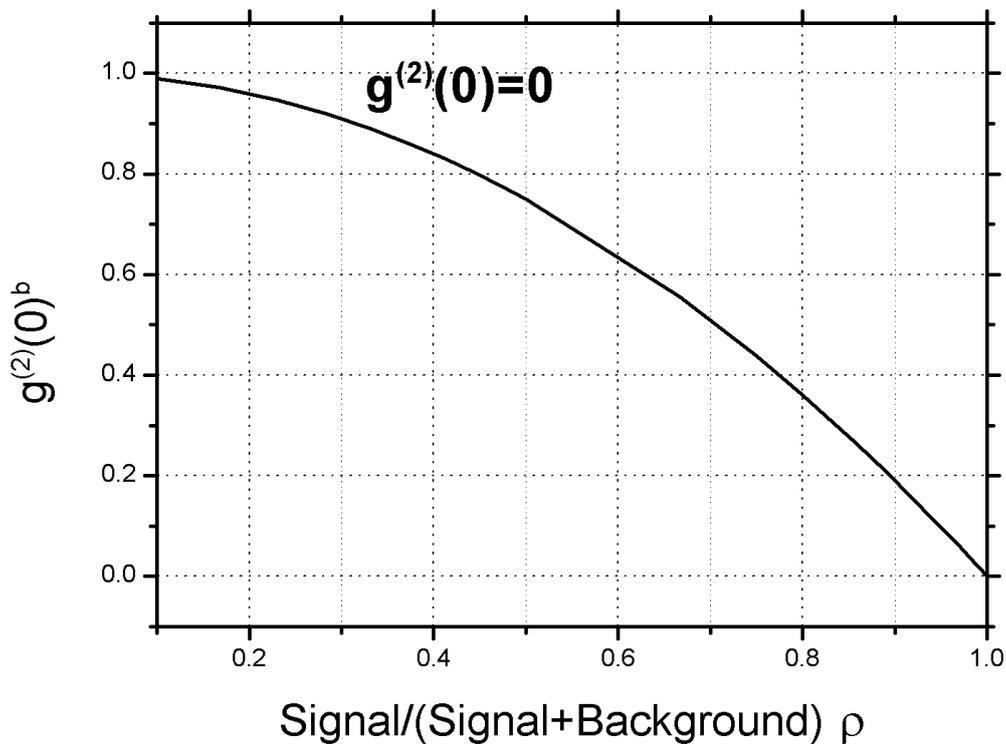


圖 2-14: 當  $g^{(2)}(0)=0$  時，有背景參數的二次相關性函數與  $\rho$  的關係。

## 第三章 量子點與微共振腔基礎理論

### 3.1 量子點

#### 3.1.1 基本量子點結構與操作原理

量子點是一小塊能隙  $E_{g,QD}$  的半導體，其長寬和厚度皆為數十奈米，然後埋入塊材半導體，塊材半導體的能隙大於量子點的能隙( $E_{g,bulk} > E_{g,QD}$ )，因此形成三維位能井且其能階完全量子不連續化。

量子點中每一個能階都可以保持 2 個電子，與原子的電子結構非常相似，而在最低能階可以包容兩個自旋相反的電子，因為它們被侷限在量子點內的電子電洞被庫倫作用力而互相吸引，電子電洞對當作單一個體稱作為激子(exciton)。通常一個電子電洞對稱為單激子(X)，兩個電子電洞對叫做雙激子(bi-exciton)( $X_2$ )，n 個電子電洞對就為( $X_n$ )，帶電的激子  $X^*$  就是有著不平衡電子或電洞數目的激子。傳統量子點的運作可以用圖 3-1 來表示。載子(電子或電洞)在量子點附近的塊材半導體受到雷射激發(光子能量大於能隙)或電激發而產生，因為量子點的能量較低將載子捕捉進入位能壁中侷限，然後形成 n 個激子最後很快的復合釋放光子之後電子回到基態。此系統非常快速且自發性，類似一個雙能階系統。一個電子電洞對射出一個特定能量的光子而復合，新的 n-1 激子射出另一個光子而回到新的 n-2 的激態。

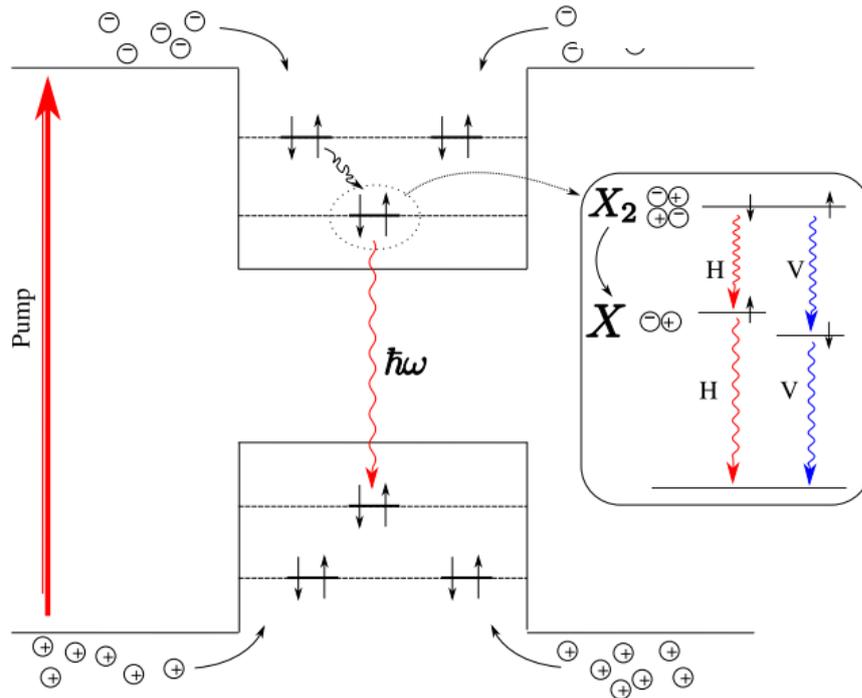


圖 3-1: 在 CW 雷射下基本的量子點操作原理。右方插入圖為雙激子-激子串流和電子自旋極化分裂，不同自旋電子和電洞的復合決定了光子偏振的方向性(垂直 V 或水平 H)。

### X/ $X_2$ 串流(cascade)

從圖 3-1 插入圖可以看出量子點可以被激發到高能激發態也就是雙激子態，因為量子點本身成長時應力不均導致在 XY 方向不對稱，使其激子態發生精細結構分裂(fine structure splitting)，電子電洞交換互相作用，分裂了原本激子的簡併態，變成不同電子佔據的自旋態，導致激子的水平偏振與垂直偏振的躍遷頻率產生微小差異；但雙激子態為自旋單態(spin-singlet state) 不會因為顯示出精細結構效應，卻會能量衰變到兩個不同偏振的激子態，發射出不同偏振態的光子。

### 3.1.2 能量相依關係和速率方程式(rate equation)

我們寫出量子點能階的速率方程式，每個能階的群數(population)可以用在量子點中在任意時間點  $t$  找到  $i$  個複數激子  $X$  的載子佔有機率  $n_i(t)$  來取代，這時速率方程式可以寫成

$$\frac{dn_i}{dt} = Gn_{i-1} - \frac{n_i}{\tau_i} + \frac{n_{i+1}}{\tau_{i+1}} - Gn_i \quad (3.1)$$

在此  $G$  是載子的光子產生速率，也就是電子電洞對被量子點捕捉的速率，這與雷射挹注強度相關，在連續模式(CW mode)之下為特定值，在脈衝模式(pulsed mode)之下與時間相關。我們只考慮電子和電洞馬上就被捕捉的情況下，其他的項目可以用下列方式來解釋：

1.  $Gn_{i-1}$  是從  $i-1$  的複數激子  $X_{i-1}$  產生  $i$  的複數激子  $X_i$  也就是捕捉一個電子電洞對
  2.  $-\frac{n_i}{\tau_i}$  是自發性復合從  $i$  到  $i-1$
  3.  $\frac{n_{i+1}}{\tau_{i+1}}$  自發性復合從  $i+1$  到  $i$
  4.  $Gn_i$  是從  $i$  的複數激子  $X_{i+1}$  產生  $i$  的複數激子  $X_i$  也就是捕捉一個電子電洞對
- 在連續模式下  $G$  是定值，而量子點群數到達穩態(steady state)。

$$n_i = n_0 G^i \prod_{j=1}^i \tau_j \quad (3.2)$$

載子佔有機率(occupation probability)  $n_i$  決定譜線  $X_i$  的強度，式(3.2)預測了單激子  $X$  的譜線在光致激發(photoluminescence)頻譜強度隨著雷射的強度增加而線性增加，而雙激子  $X_2$  的譜線在光致激發頻譜強度隨著雷射的強度增加而二次性增加。只要分析譜線的面積與雷射功率的關係，就可以分辨該譜線來源為雙激子單激子。

### 3.1.3 量子點樣品製造

#### 量子點成長

所觀察的砷化銦 (InAs)量子點是由李依珊學姊採用分子束磊晶法(molecular beam epitaxy, MBE)成長，樣品(lm5207)結構如圖 3-2 所示。首先在砷化鎵(GaAs)基板(100)方向上先成長約 1000 Å 的緩衝層，目的在於使磊晶的表面層平坦且減少基板表面的缺陷。為了增強量子點的發光效率，因為單一量子點的強度太低，HBT 實驗中因訊雜比過低而影響實驗數據可靠度，所以在成長量子點之前先在底部用分子束磊晶長出平面反射鏡結構。此結構包含從 GaAs 基板長出的底部布拉格反射鏡(distributed Bragg reflector, DBR)，要產生高反射率的 DBR 結構必須要交互堆疊  $1/4\lambda$  波長厚的 GaAs 和 AlAs 材料。先在底部長出 15 層 DBR，成長 100 nm 的 GaAs，再利用 Stranski-Krastanow 成長法來成長一層 InAs 量子點。為了得到密度極稀的量子點以便觀察單量子點的光激發光譜線，在成長 InAs 量子點時，我們刻意不讓樣品旋轉而使樣品保持靜止，使得量子點的密度在不同區域，由於與分子束裝置(effusion cell)距離不同而有從疏到密的變化，以便選擇適當密度的區域來做實驗，成長量子點之後再覆蓋一層 100nm GaAs，最後在頂部成長兩層 DBR，即完成量子點樣品基本結構。

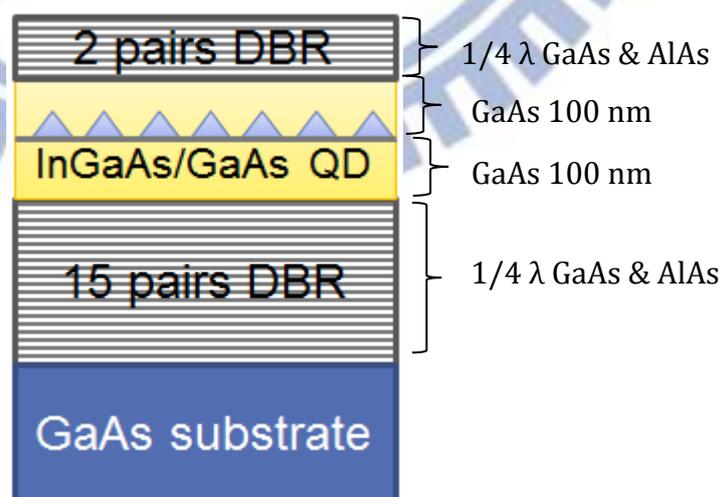


圖 3-2: 量子點結構示意圖。

## 鋁光窗蝕刻

為了尋找單一量子點，我們選用鋁當不透光層光窗，在其中開奈米孔徑的光窗，直徑大小從 200 nm 到 800 nm 皆有。主要步驟如下圖 3-3 所示。

1. 以電子槍(E-Gun)蒸鍍方法在樣品表面鍍上一層厚度為 20 nm 的鋁來做不透光層。
2. 在試片上旋轉塗佈 (spin coating) 一層 PMMA 當電子束微影用的光阻，接著利用電子束微影將設計好的奈米孔徑圖案轉移到 PMMA 上，再經過顯影劑 (MIBK) 顯影。
3. 用顯影液作為蝕刻液，因為其蝕刻速度較 BOE 慢，蝕刻時間約 90 秒，在鋁膜上蝕刻出設計好的奈米孔徑，最後再以丙酮 (ACE) 去除 PMMA 後便完成金屬奈米孔徑的光窗。

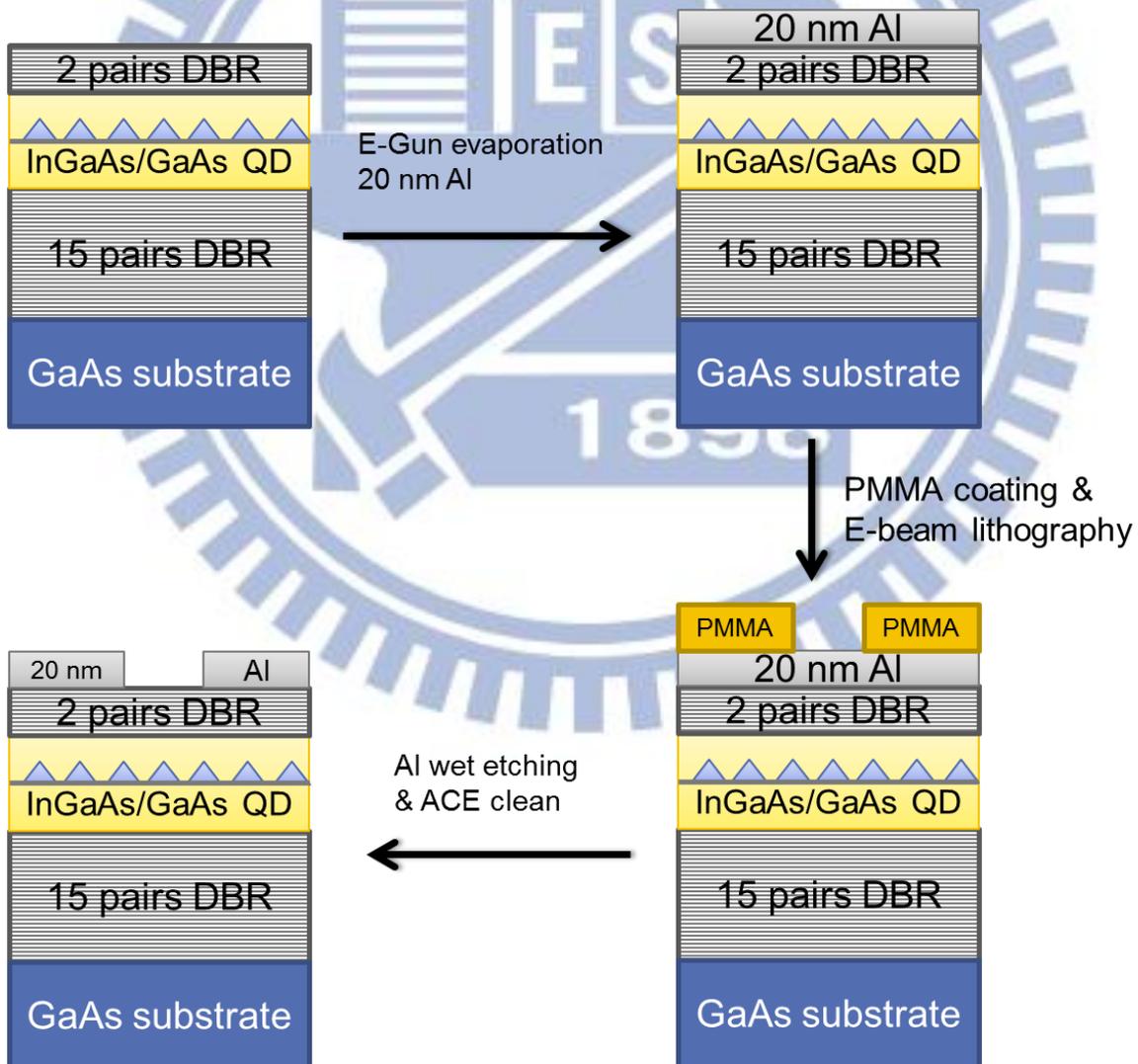


圖 3-3: 鋁光窗蝕刻流程。

## 3.2 微共振腔基礎理論

在 1940 年代 Purcell 等科學家預測了原子在共振腔中會有不同於在自由空間中的現象[15]，使得共振腔量子電動力學 (cavity quantum electrodynamics)--- 光與物質之間的交互作用 --- 成了一個非常重要的研究課題。此理論討論了光子能態與原子的電子能態可以藉由共振腔的侷限效應而相互耦合，並交換能量。由於共振模態的波長是由共振腔的大小所決定，早期受限於技術，研究的範圍大多在微波波段。近年來，隨著製程技術的進步，使製作出大小在光波波長尺度的共振腔得以實現，這不但可以更進一步的研究量子電動力學效應，也可以將這些效應用來實現的量子密碼(quantum cryptography) 及量子計算(quantum computing) 等技術。

### 3.2.1 微共振腔工作原理

光學共振腔是一種可以將光侷限於其中的結構，在一個理想的共振腔中，光會永遠被侷限在其中，但實際上所有的共振腔都會有損耗，損耗的高或低決定了此共振腔的品質好壞，因此我們定義共振腔中光強度 ( $I$ ) 的起始強度為  $I_0$ ，則光強度隨時間的變化為

$$I(t)=I_0\exp(-\omega_0 t/Q) \quad (3.3)$$

其中我們定義  $Q$  為共振腔的品質係數，而品質係數的倒數稱為損耗係數( $\kappa \equiv 1/Q$ )。

當一個光源(例如原子或者量子點)由高能態躍遷到低能態時，其能量差會以光的形式釋放，此現象稱為自發輻射。若原子在自由空間中產生自發輻射，自發輻射的速率為  $\gamma_0$ 。由於自由空間中的有無限多個真空態，輻射可耦合到任何一個真空態，然而，當光源被置放在一個具有單一共振態的光學共振腔時，由於共振腔中的能態密度會集中在共振態，若原子與共振腔發生共振，原子自發輻射便可以耦合到具有高態密度的共振態上，而耦合的程度稱為耦合強度( $g$ )，當耦合的強度大於共振腔的損耗及自發輻射速率時 ( $g > \kappa, \gamma_0$ )，原子的自發性輻射速率便會超過共振腔的損耗速率，使原子發出來的光子

有機會被原子重新吸收而躍遷回高能態，再重新放出光子，這樣來回躍遷的現象稱為 Rabi 震盪 (Rabi oscillation)，或強耦合效應。另一方面，當耦合的強度小於共振腔的損耗及自發輻射速率時 ( $g < \kappa, \gamma_0$ )，原子的自發輻射速率仍然會因為共振腔提供了大量的態密度而增快，最早預測此現象的是 E. M. Purcell，而速率的改變量稱為 Purcell factor ( $F_p$ )，經過推導可得[14]

$$F_p = \frac{3Q(\lambda/n)^3}{4\pi^2 V} \quad (3.4)$$

其中  $\lambda$  為共振模態的波長， $n$  為共振腔的等效折射係數，而  $V$  為共振模態的模態體積。此現象稱為 Purcell 效應，或弱耦合效應。

### 3.2.2 強耦合效應(strong coupling)

假設一個理想的系統，其發射光源與光場(photon field)的去同調(decoherence)可以被忽略，此系統可以用 Jaynes-Cummings Hamiltonian 的形式來想成一個非微擾的發射器-光子耦合的力學[16]:

$$H = \hbar\omega_0\hat{\sigma}_3 + \hbar\omega_\mu(\hat{a}_\mu^\dagger\hat{a}_\mu + \frac{1}{2}) + ig(\hat{\sigma}_-\hat{a}_\mu^\dagger - \hat{\sigma}_+\hat{a}_\mu) \quad (3.5)$$

在此， $\hat{\sigma}_-$ ,  $\hat{\sigma}_+$ ,  $\hat{\sigma}_3$  代表雙能階系統(two-level)的赭自旋(pseudospin)運算子，其基態  $|g\rangle$  和激發態  $|e\rangle$ ，此哈密頓(Hamiltonian)形式由基態  $|g,0\rangle$  和二重階梯態 (ladder of doulets)  $|e,n\rangle$ ,  $|g,n+1\rangle$ ,  $n=0,1,\dots$ ，在共振時  $\omega_0 = \omega_\mu$ ，同調耦合使綴飾態(dressed state)分裂  $2g\sqrt{n+1}$ ，分裂程度由共振腔內的光子數目  $n$  所決定。

激子(exciton)和光子耦合強度(exciton-photon coupling strength)  $g$  由矩陣形式的量子點的偶極矩(dipole moment)  $\vec{d}$  和在共振腔內量子點位置的電場  $\vec{E}$  的內積來定義 ( $g = |\langle \vec{d} \cdot \vec{E} \rangle|$ )。當激子處在共振腔電場分布最強位置的情況下，耦合強度  $g$  可以用震盪器強度(oscillator strength, OS)  $f = 2m\omega_0 d^2 / (e^2 \hbar)$  來表示

$$g = \left( \frac{\hbar^2}{4\pi\epsilon_r\epsilon_0} \frac{\pi e^2 f}{m\hat{V}} \right)^{1/2} \quad (3.6)$$

在此 $\epsilon_r$ 和 $\epsilon_0$ 是相對和真空介電常數， $m$ 為自由電子質量， $\hat{V}$ 與有效共振腔模態體積 (effective cavity mode volume) 有關。

在實際的共振腔中去同調過程(decoherence process)發生，影響發射光源和共振腔。光子從共振腔中洩漏出來或是自發輻射與連續準模態耦合都是其中的例子。然而只要去同調過程夠慢，與 Rabi 週期接近，整個耦合系統能處在強耦合效應的狀態之下且會經歷阻尼 Rabi 震盪(damped Rabi oscillations)。快速的去同調過程會導致耦合系統產生過阻尼現象，取而代之發生弱耦合效應。在弱阻尼共振時兩個本徵模(eigen modes)的能量可以用下列方程式來表示：

$$E_{1,2} = E_0 - i(\gamma_c + \gamma_x)/4 \pm \sqrt{g^2 - (\gamma_c - \gamma_x)^2/16} \quad (3.7)$$

在此 $E_0$ 是未耦合激子 X 和光子模態 C 的能量， $\gamma_x$ 和 $\gamma_c$ 是未耦合激子 X 和光子模態 C 的半高線寬。從(3.7)可以得到系統的真空 Rabi 能階分裂(vacuum Rabi splitting)

$$\Delta E = 2\hbar\Omega = 2\sqrt{g^2 - (\gamma_c - \gamma_x)^2/16} \quad (3.8)$$

強耦合效應產生的模態能階分裂出現的條件為

$$g^2 - \frac{(\gamma_c - \gamma_x)^2}{16} > 0 \quad (3.9)$$

因為通常其量子點的譜線線寬通常遠小於共振腔模態線寬，(3.9)的條件可以簡化為

$$g > \gamma_c/4 \quad (3.10)$$

這是單一量子點激子在微共振腔模態中發生強耦合效應的閾值條件。

### 3.2.3 弱耦合效應(weak coupling regime)

在弱耦合效應範疇之下，自發性輻射過程是不可逆的，而在式(3.7)中的本徵能量  $E_{1,2}$  有相同的實部，能階沒有分裂，Rabi 震盪沒有發生，儘管如此，共振腔的各項條件會影響自發性輻射過程，像是調變光譜密度的光子模態、真空場的大小、激子偶極矩相對於共振腔的極化方向等等。發射器與共振腔之間的光譜失諧(spectral detuning)會可以增強或抑制相對於發射器在一個均勻介質傳播的自發輻射速率，發射器在一個均勻介質其相對折射率  $n$  傳播的自發輻射速率可以用下式來表示

$$\frac{1}{\tau_{free}} = \frac{|d|^2 \omega^3 n}{3\pi \epsilon_0 \hbar c^3} \quad (3.11)$$

由式(3.10)知道弱耦合效應的限制是  $g \ll \gamma_c$ ，此條件之下(3.7)本徵能量可以近似成  $E_0 - ig^2/(2\gamma_c)$ ，這意味著發射器的自發性輻射速率以指數式衰退，

$$\frac{1}{\tau_{cav}} = \frac{4g^2 Q}{E_0 \hbar} \quad (3.12)$$

此時  $\gamma_c = E_0/Q$ ，發射器的自發輻射速率改變是因為共振腔內有侷限性光學模態的存在，這最初由 Purcell 在 1946 年所發表的，在共振腔內和在均勻介質輻射速率的比率又被稱為 Purcell factor，而且表示成

$$F_p = \frac{\tau_{free}}{\tau_{cav}} = \frac{3Q(\lambda_c/n)^3}{4\pi^2 V} \times \frac{|\vec{d} \cdot \vec{f}(r_e)|^2}{|d|^2} \quad (3.13)$$

在此，第一個分數項中包含共振腔品質係數  $Q$  和模態體積，因此與微共振腔製造技術性層面相關，第二項含有過度偶極矩與共振腔模態電場之間的空間上重疊與方向匹配。將發射器與共振腔之間的光譜去同調(spectral detuning)  $\Delta$  考慮進去 Purcell factor 之後

$$F_p = \frac{\tau_{free}}{\tau_{cav}} = \frac{3Q(\lambda_c/n)^3}{4\pi^2 V} \times \frac{\gamma_c^2}{4\Delta^2 + \gamma_c^2} \times \frac{|\vec{d} \cdot \vec{f}(r_e)|^2}{|d|^2} \quad (3.14)$$

### 3.2.4 微共振腔種類介紹

目前在微共振腔的應用上，最常使用的有微圓盤共振腔，微柱共振腔，以及薄膜型光子晶體微共振腔，以下將針對這三種微共振腔做介紹：

#### 微圓盤共振腔(microdisk cavity)

微圓盤共振腔是利用全反射原理，由於圓盤的上下左右都是空氣，圓盤中的光會因全反射而使光侷限在圓盤中而形成三維的維共振腔。微米圓盤中的週長為光源波長的整數倍，使光沿著圓盤邊環繞而形成駐波，因此又名耳語廊模態(Whispering-Gallery mode)。微圓盤共振腔具有製程簡單，高品質參數等等優點，但由於共振態的模態體積較大( $\sim 6(\lambda/n)^3$ )，因此光源較不易與共振腔形成耦合。圖3-4為微圓盤共振腔的SEM圖形。

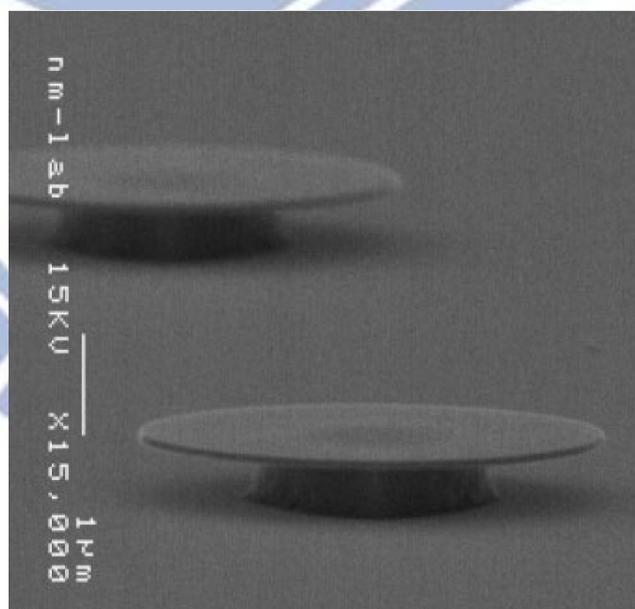


圖 3-4: 微圓盤共振腔的 SEM 圖形[4]。

## 光子晶體微共振腔

薄膜型光子晶體共振腔是在一個厚度約半個波長的薄膜上製作二維的光子晶體缺陷結構。此種共振腔主要是利用光子晶體能隙效應，當光的波長在光子晶體的能隙範圍時，光便無法在光子晶體中傳遞。圖3-5是二維光子晶體的示意圖，若在週期結構中刻意的製造缺陷，其中的光源所發出來的光便無法在平面方向上傳遞，而往上下方向的光則會因全反射而侷限，形成三維的共振腔。

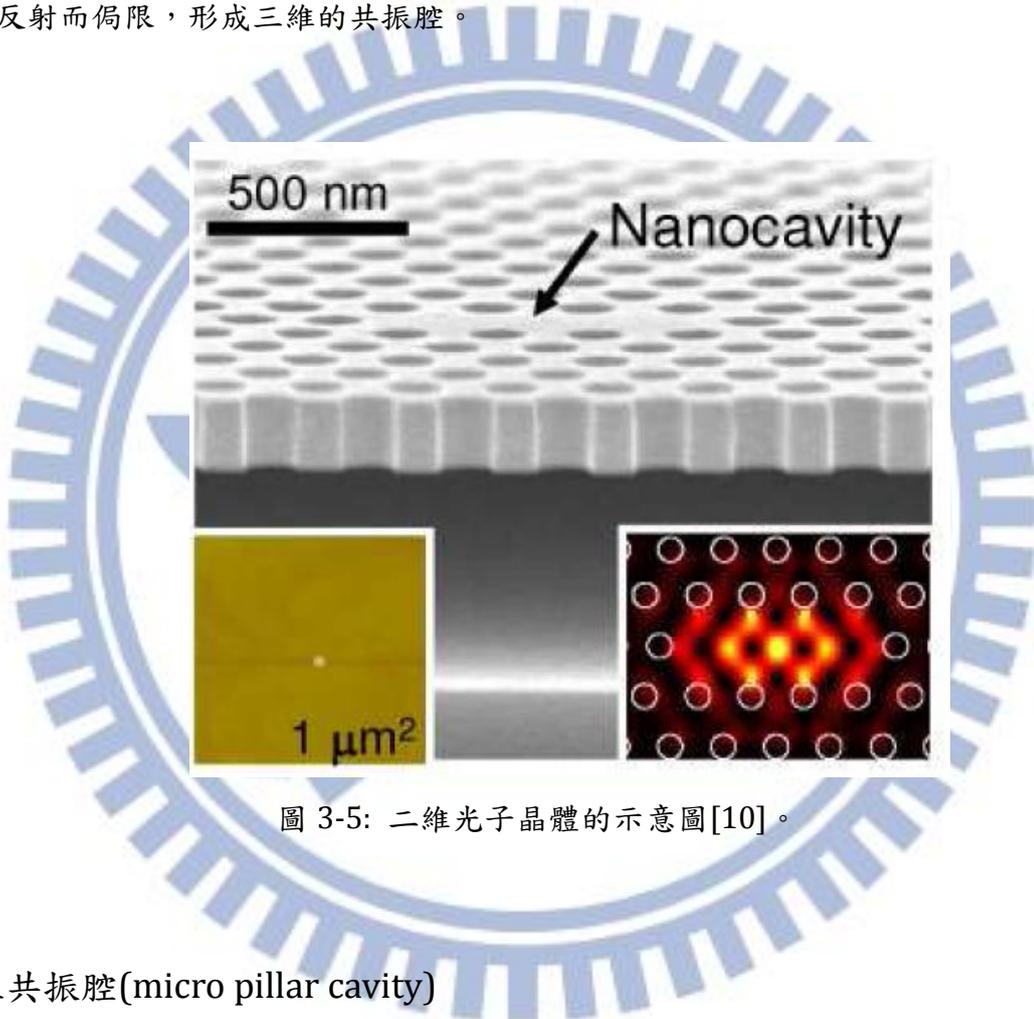


圖 3-5: 二維光子晶體的示意圖[10]。

## 微柱共振腔(micro pillar cavity)

微柱共振腔是利用布拉格反射層(Distributed Bragg reflector, DBR)將光侷限於一個維度，另兩個維度則是利用全反射，形成三維侷限的共振腔。其製作的方法是用在磊晶的方式成長上下兩組布拉格反射層，兩組反射層間有一層厚度等於光源波長の間隔層，接著有兩種方式來蝕刻出奈米微柱，第一種利用電子束微影定義出奈米的圓型。完成電子束的曝光顯影後用乾蝕刻蝕刻出柱狀的結構，由於微柱共振腔的結構的深寬比相當大，因此蝕刻困難度很高；第二種是用黃光微影之後，再用感應耦合電漿離子(ICP)蝕刻出微

柱，本論文使用的樣品就是利用微柱微柱共振腔的品質參數較低於微圓盤共振腔，模態體積相近( $\sim 5(\lambda/n)^3$ )，也有不易耦合的問題。但因光主要由共振腔上方射出，對於應用上較為方便。圖3-6是微柱共振腔的SEM圖形，微柱半圓形狀物為未完全去除的光阻。

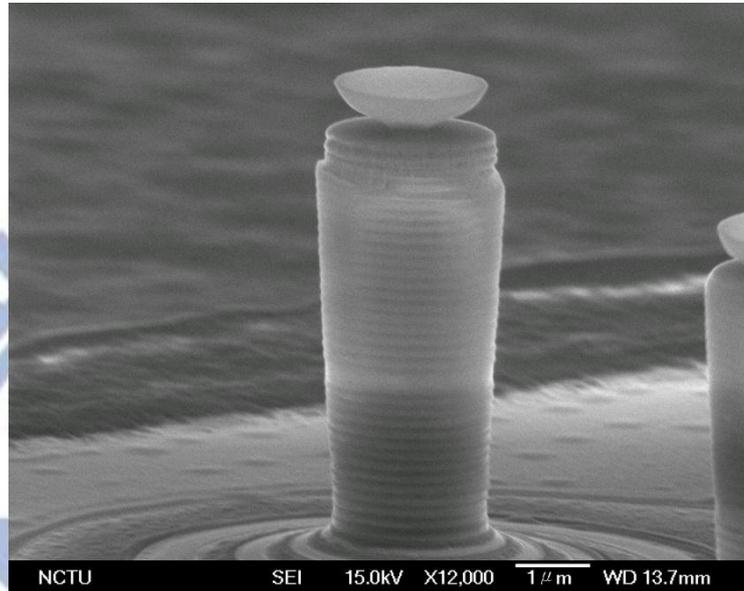


圖 3-6: 微柱共振腔的 SEM 圖形(交大電子所李依珊學姊所拍攝)

### 3.2.5 微柱共振腔樣品製造

本微柱共振腔由交大電子所博士班李依珊學姊所製作，要製作內含低密度量子點的高品質系數微柱共振腔，必須要用分子束磊晶(molecular beam epitaxy, MBE)長出平面結構。實驗所用的樣品由 MBE 實驗室所成長出的平面結構圖 3-7，此結構包含從 GaAs 基板長出的底部布拉格反射鏡(distributed Bragg reflector, DBR)，再來是 GaAs 共振腔，最後是頂部的 DBR。要產生高反射率的 DBR 結構必須要交互堆疊 71 nm GaAs 和 75nm AlAs 材料，首先推疊底部的布拉格反射鏡共有 24 對，再來成長 280 nm GaAs 做主動區，中間主動區包含一層低密度的 InGaAs 量子點結構，最後成長頂部的布拉格反射鏡共 20 對。

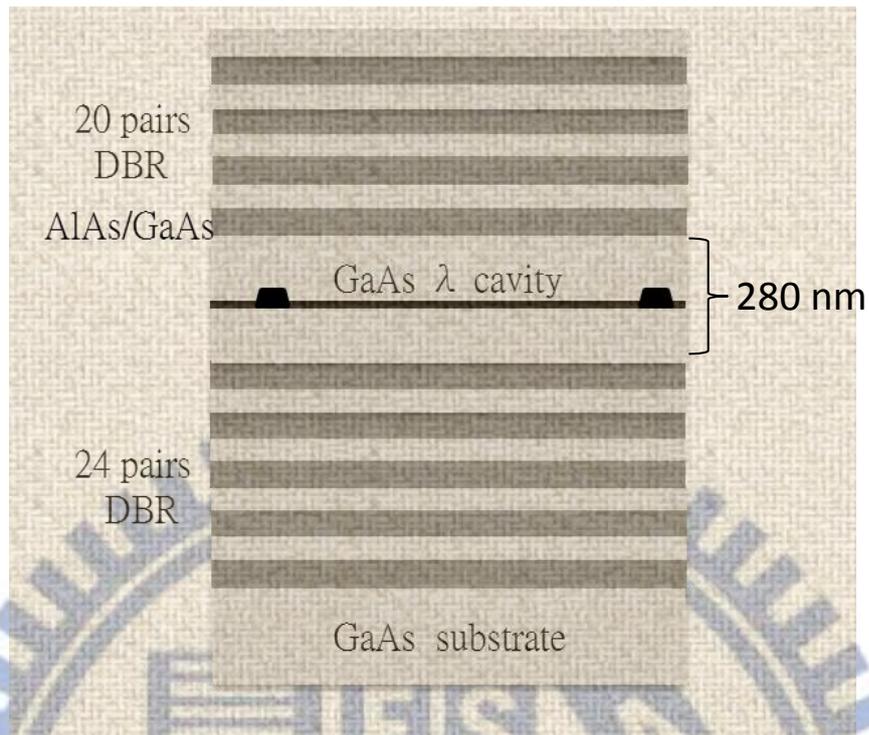


圖 3-7: 微柱共振腔的平面結構圖形。

從 MBE 長出平面 DBR 共振腔結構之後，用一般的黃光蝕刻還蝕刻出微柱結構，使用的光罩圓柱圖形直徑從  $5\ \mu\text{m}$  到  $1.5\ \mu\text{m}$  都有，製程步驟如圖 3-8，首先在樣品上面旋佈光阻 5214E(圖 3-8a)，經過曝光反轉烤之後，顯影留下微柱上方之光阻(圖 3-8b)，用感應耦合電漿離子蝕刻出微柱圖形(圖 3-8c)，最後用丙酮去掉頂層光阻，前面該樣品步驟均為李依姍學姊完成。

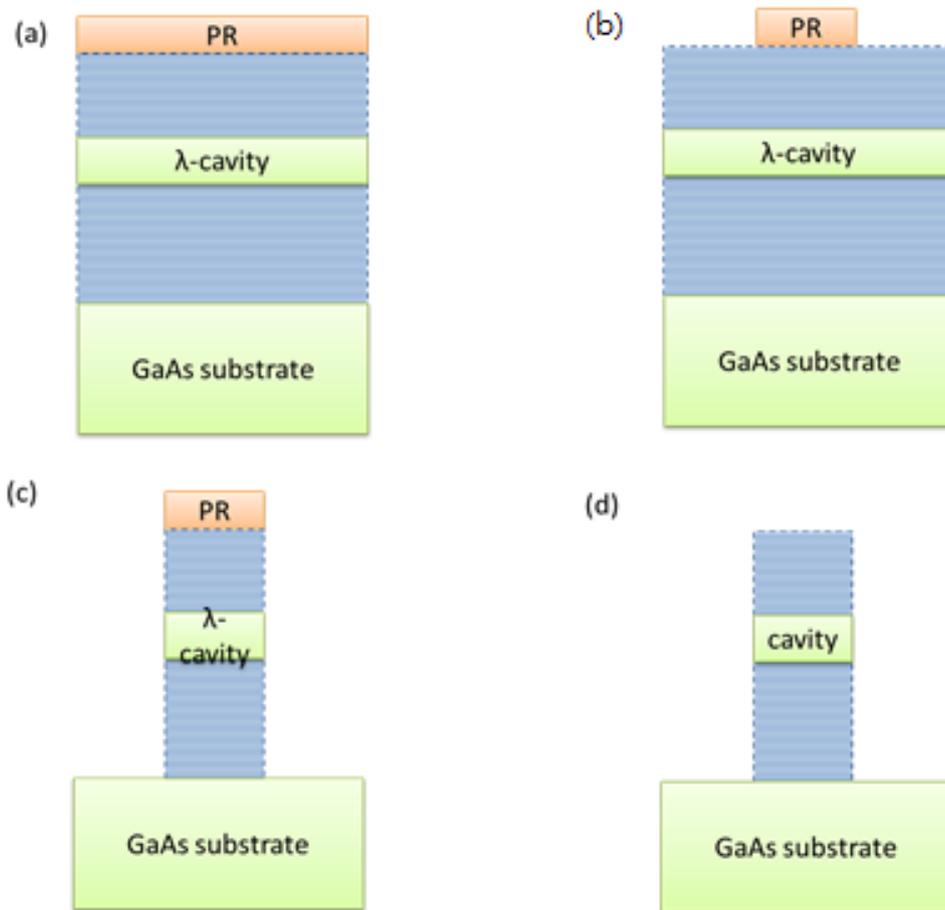


圖 3-8: 微柱共振腔的製程步驟。

## 第四章 實驗結果與討論

本論文分別對兩種不同結構的量子點樣品做研究分析，第一、量子點在鋁光窗內的樣品，第二、在微共振柱狀結構(micropillar microcavity)中量子點樣品，我們會對這兩種不同的樣品做溫度相依分析(temperature dependence)、注入雷射功率相依分析(power dependence)、二次相關性分析(second-order correlation)，分別做數據分析與討論。

### 4.1 在鋁光窗中的量子點

本實驗所用的樣品 Lm5207，用自組成法(self-assembly)成長量子點，因為之前直接成長量子點的樣品光子輻射蒐集效率較差，為了增強量子點蒐集效率，在樣品下方成長 15 層布拉格反射鏡(distributed Bragg reflector, DBR)，上方長 2 層 DBR，使得往樣品底的量子點光源能夠反射到樣品表面，增加量子點螢光蒐集效率，最後再覆蓋一層鋁薄膜，再經 e-beam 微影，黃光蝕刻後，樣品上面包含了大量數量而且不同形狀大小的孔洞，如圖 4-1 為對這些孔洞做掃描式電子顯微鏡(SEM)量測，為了方便識別起見，將這兩個不同的孔洞命名成 Hole A 和 Hole B。

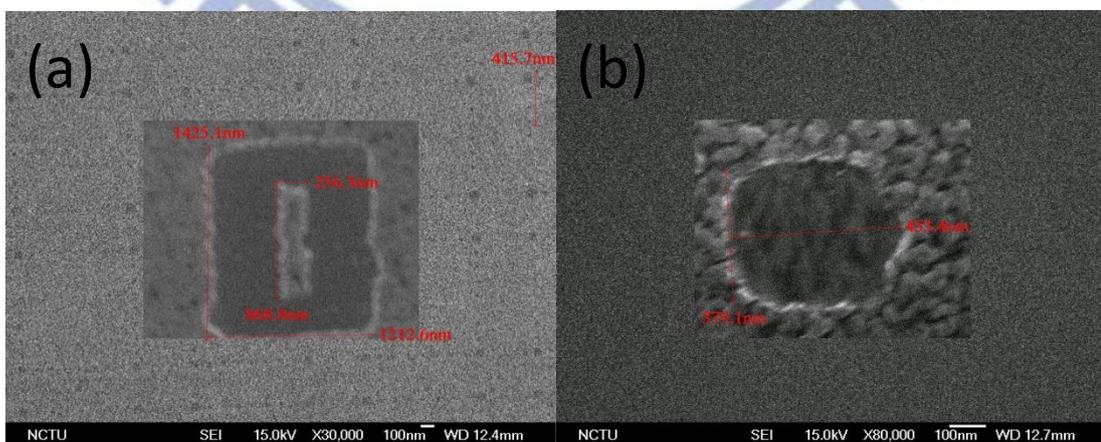


圖 4-1：各種不同形狀的奈米孔洞，洞內深色區域為 GaAs，淺色個粒狀不平區域為鋁的小晶粒(grain); (a) Hole A 的 SEM 圖形；(b) Hole B 的 SEM 圖形。

### 4.1.1 強度相依分析(power dependence)

量子點輻射的強度相依分析是為了了解特定的譜線(spectral line)，如激子(exciton)和雙激子(bi-exciton)的特性，受激發的光若是激子會遵循一次關係，若是雙激子會遵循二次關係(參 3.1.2)，我們即可用譜線強度的次方關係來判斷該譜線為激子或是雙激子。

#### Hole A

此洞的量子點為以鋁光窗隔絕樣品中受激輻射最強的量子點，但其並非單一量子點，此洞中包含兩個量子點，其中一個量子點的激子螢光強度較強，可使 HBT 實驗的訊雜比提高，只要用帶通濾鏡濾掉其他譜線，即可做 HBT 實驗，此為選擇用此洞的原因，圖 4-2 為 Hole A 在溫度 4 K 時不同雷射功率之下積分時間 3 秒後，PL 強度與波長之關係圖，從圖中可以看出總共有三根譜線，一根中心波長在 924.32 nm，另一根在 929.55 nm 的位置，在高雷射功率之下，第三根在 928.32 nm 出現，我們對這些譜線面積積分之後，做積分強度與注入雷射功率的相依性；圖 4-3 為其譜線積分強度與雷射功率的關係，在對其做次方項擬合，929.55 nm 的次方項為 1.410，928.32 nm 的次方項為 2.880，理論上，雙激子的次方項為 2，激子的次方項為 1，在實驗分析時，很少出現完全符合理論值，雙激子的次方項都會約為單激子的兩倍，再加上 928.32 nm 的能量較高，推論這兩條譜線為同一個量子點的激子(QD<sub>1</sub>X)和雙激子(QD<sub>1</sub>XX)；而 924.8 nm 的次方項為 1.101，推論為第二個量子點的激子譜線(QD<sub>2</sub>X)。

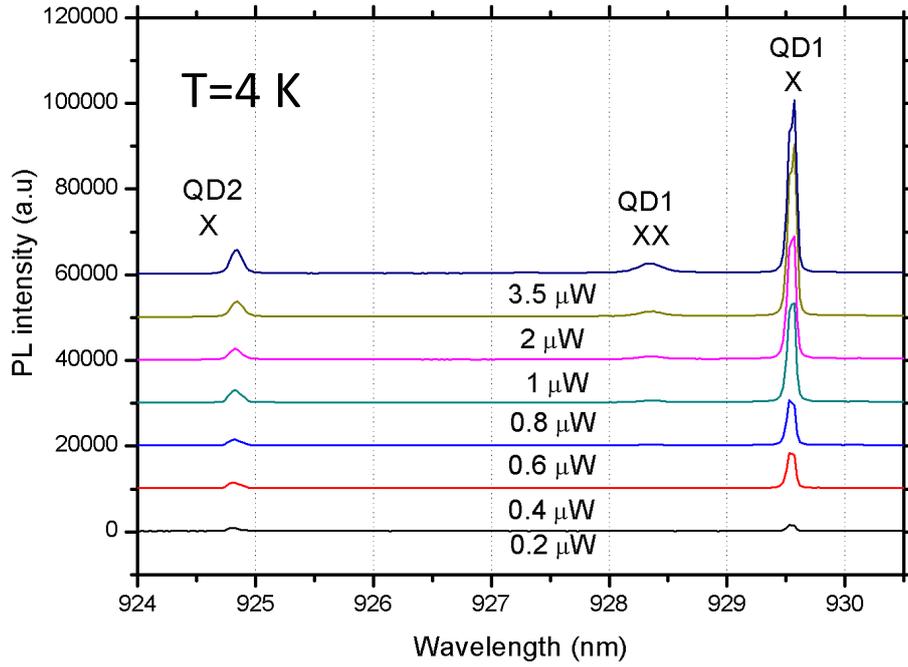


圖 4-2: Hole A 在不同雷射功率之下積分 3 秒後，PL 強度與波長之關係。

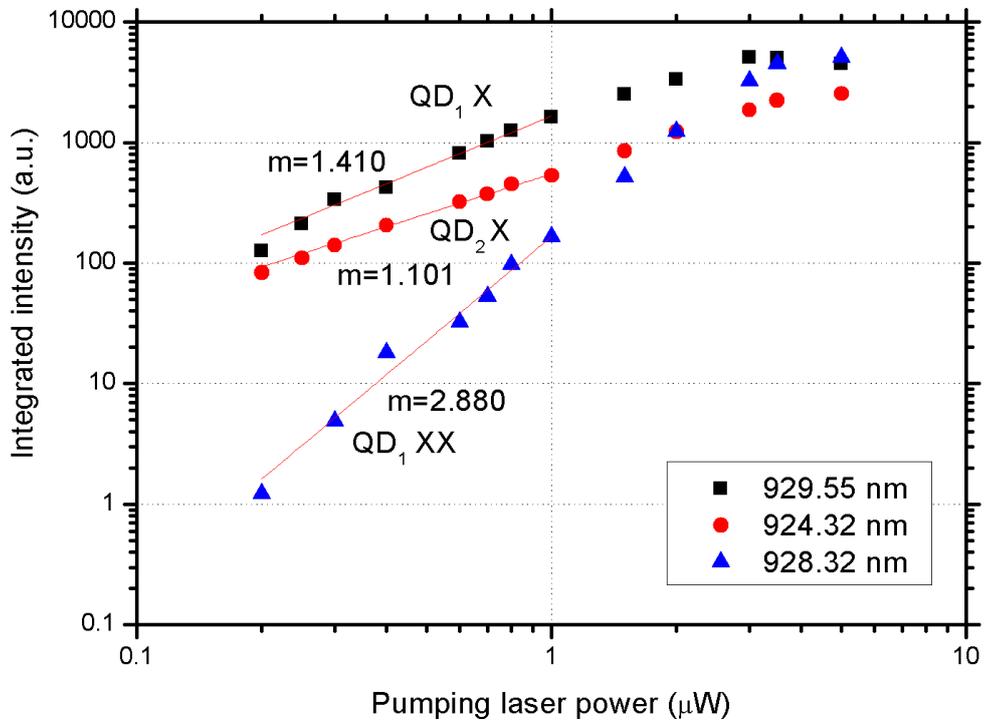


圖 4-3: Hole A 譜線積分強度與注入雷射功率相依關係。

## Hole B

Hole B 內量子點發光強度較 Hole A 弱，Hole B 也含有兩個不同的量子點在內，圖 4-4 為其溫度 4 K 在不同雷射功率之下積分 3 秒後，PL 強度與波長之關係圖，由圖可以看出主要譜線包含 913.63 nm、917.62 nm 和 919.10 nm，其中 913.63 nm 的譜線強度最強，為用來選作 HBT 二次相關性實驗譜線，對這些譜線面積積分之後，做積分強度與注入雷射功率的相依性，再對數據作次方項擬合，圖 4-5 為其譜線積分強度與注入雷射功率的關係圖，913.63 nm 的次方項為 1.353，917.62 nm 的次方項為 1.872，919.10 nm 的次方項為 0.844，Hole B 中含有多個量子點的譜線，因 917.62 nm 的次方項約為 919.10 nm 的兩倍，推論 917.62 nm 和 919.10 nm 的譜線為同一個量子點的雙激子(QD<sub>2</sub>XX)和激子(QD<sub>2</sub>X)，而 913.63 nm 為另一個量子點的激子譜線(QD<sub>1</sub>X)。在注入雷射功率為 1  $\mu$ W 的情況下，Hole B 的最強譜線積分強度只有 Hole A 的五分之一，在做 HBT 實驗十分容易受背景雜訊的影響，我們在做 HBT 實驗時，則選取 913.63 nm 譜線(QD<sub>1</sub>X)作為光源。

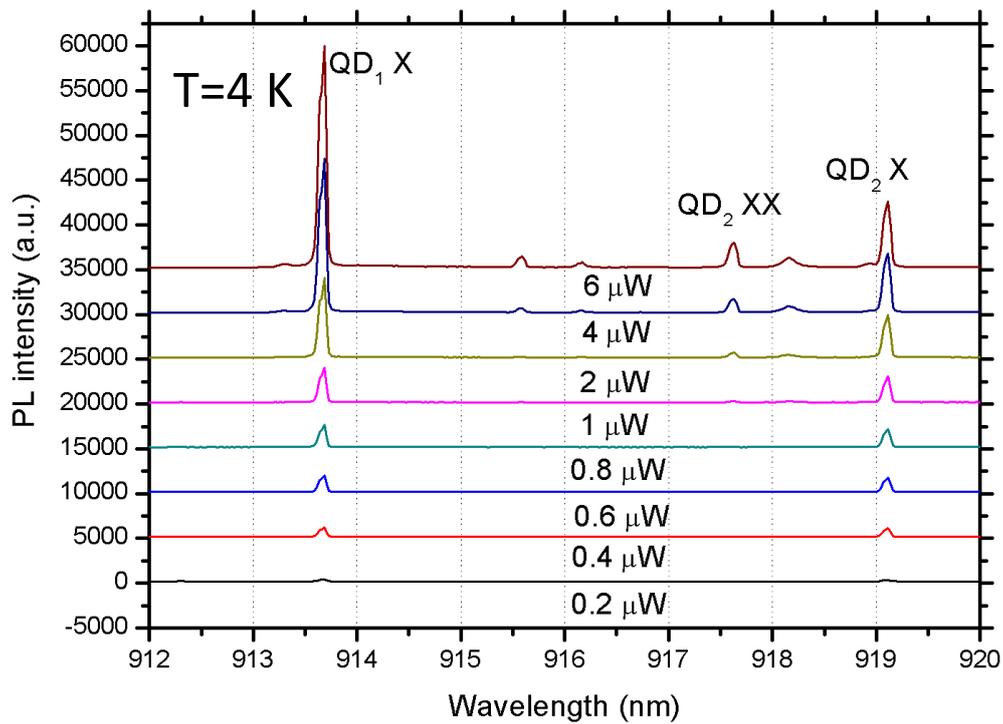


圖 4-4: Hole B 在不同雷射功率之下積分 3 秒後，PL 強度與波長之關係。

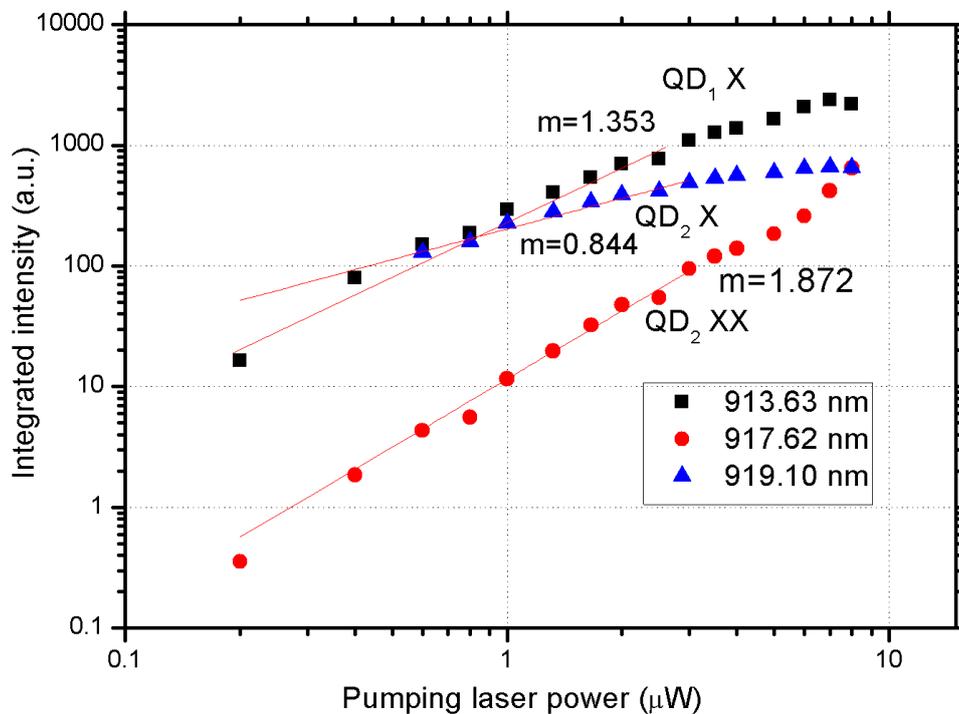


圖 4-5: Hole B 譜線積分強度與注入雷射功率相依關係。

#### 4.1.2 二次相關性函數

因為量子點的光源入射至單光子偵測器的感光元件位置，會對其解析度與每秒 count 數產生影響，SPAD 的感光元件主動區面積只有  $150 \times 150 \mu\text{m}^2$ ，我們必須移動 XYZ 三方向的聚焦鏡來改變量子點光源打在感光元件的位置，若對準程度不佳，就會使單光子偵測器解析度變差，也會使單光子偵測器的收集效率變低，使得訊號與外界雜訊的比例(S-B ratio)變差，兩個參數都會影響二次相關性函數  $g^{(2)}(0)$  的大小(參 2.2.4)，圖 4-6(a) 是 Hole A 在  $0.5 \mu\text{W}$  之下，並加上帶通濾鏡濾去不必要之訊號後，積分 500 秒所產生的圖形，此時單一 SPAD 每秒鐘偵測到的光子大約 50000 counts，是用手動調整聚焦鏡能夠達到最好的數值，進行 HBT 實驗，這時二次相關性函數在延遲時間等於 0 的點  $g^{(2)}(0)$ ，實驗值(數據中最低點)  $g^{(2)}(0)^d$  最低大約 0.41，此時我們調整聚焦鏡，使量子點光源偏離感光元件中心，使得 SPAD 偵測到的每秒鐘 counts 數降低，再進行 HBT 實驗，得  $g^{(2)}(0)$  之實驗值在每秒不同 counts 數下的關係圖 4-6(b)，從圖 4-6(b)可以看出  $g^{(2)}(0)$  隨著偵測到 counts 數減少而上升，原因在前面有提過，第一個原因是訊雜比的下降，第二個原因是因為 SPAD 本身發出的崩潰發光影響二次相關性函數，使得圖形呈現 M 字型(參 2.2.2)，使  $g^{(2)}(0)$  等於 1，由此可知當偵測器偵測速率低於 1000 counts 每秒時，儀器本身將無法量到真正的二次相關性數據，也呈現光路對準的重要性。

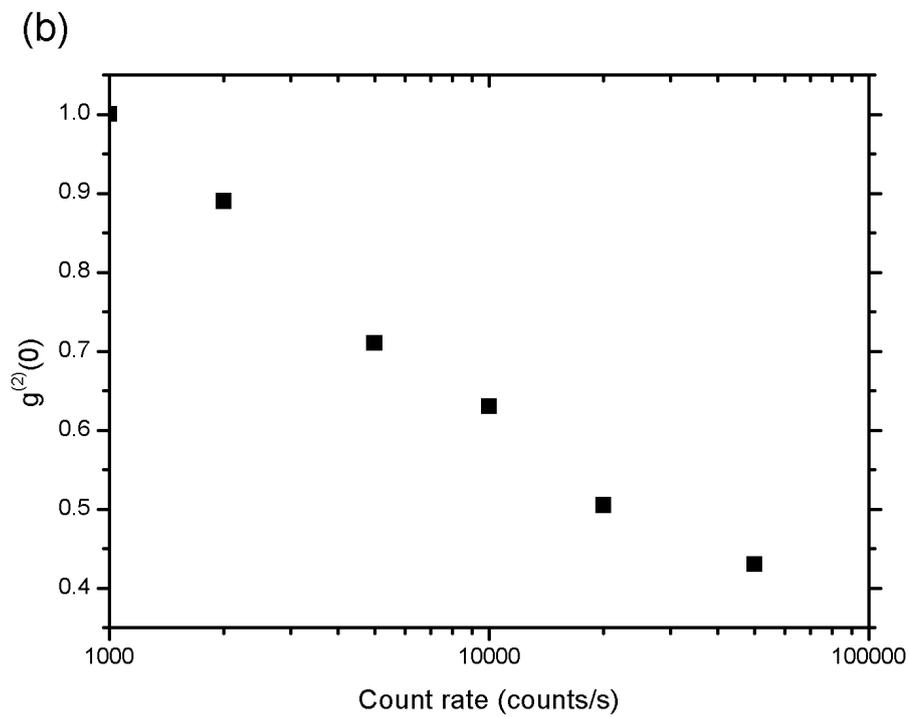
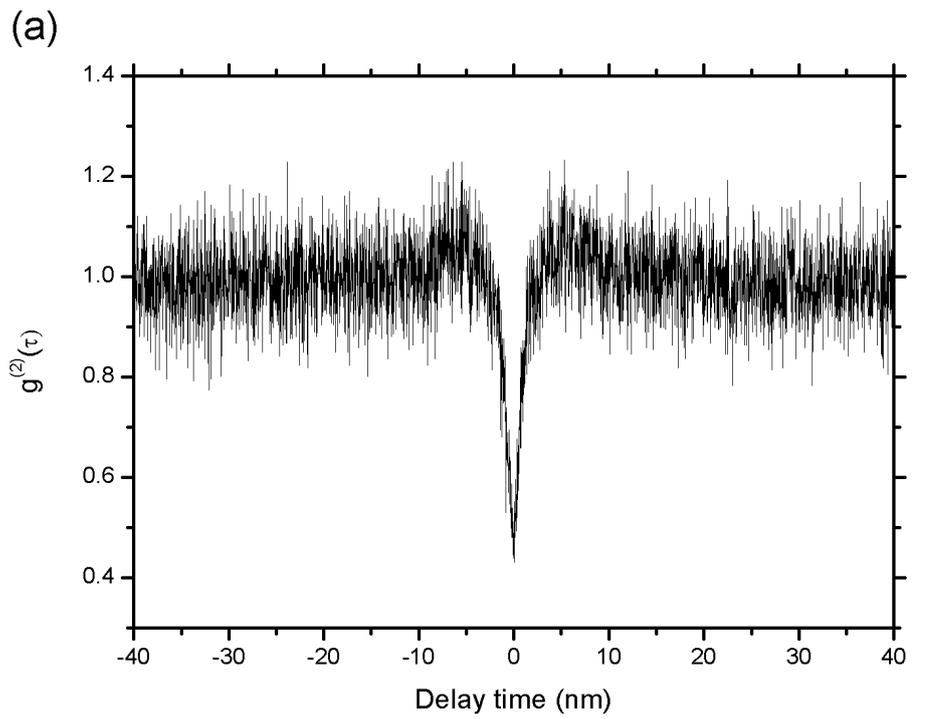


圖 4-6: (a) Hole A 在  $0.5 \mu\text{W}$  之下積分  $500 \text{ s}$  之後標準化的二次相關性函數與延遲時間的關係圖; (b)  $g^{(2)}(0)$  與偵測到的每秒 counts 數關係圖。

## Hole A

Hole A 選取 929.55 nm 的譜線也就是 QD<sub>1</sub> 的激子 X，做 HBT 相關性實驗，圖 4-7 為加上帶通濾鏡之後，積分時間 3 秒，注入雷射為 1  $\mu$ W 的時 PL 強度與波長關係圖，從圖可發現帶通濾鏡無法完全濾掉 QD<sub>1</sub> 的雙激子 XX 和 QD<sub>2</sub> 的激子 X，這些訊號將會作為雜訊影響  $g^{(2)}(0)$ 。圖 4-8 為積分 500 秒之下，QD<sub>1</sub> XX 在不同雷射功率下的二次相關性圖形，我們對實驗數據用捲積公式做了曲線擬合(參 2.2.4)，當功率為 0.28  $\mu$ W 時(圖 4-8(a))，SPAD 偵測到的計數變低，雜訊的比例上升， $g^{(2)}(0)$  值也隨之上升，也受到 SPAD 崩潰時本身所發出的光影響結果，在注入雷射功率在 0.35  $\mu$ W 之下， $g^{(2)}(0)$  有最小值(圖 4-8(b))，實驗值  $g^{(2)}(0)^d$  為 0.312，擬合值  $g^{(2)}(0)^f$  為 0.298，而當注入雷射功率加強至 1.2  $\mu$ W 時，如圖 4-8(d)，雖然不受雜訊和 SPAD 崩潰發光影響， $g^{(2)}(0)$  值卻隨之上升，原因之後會與 Hole B 的結果一起討論。

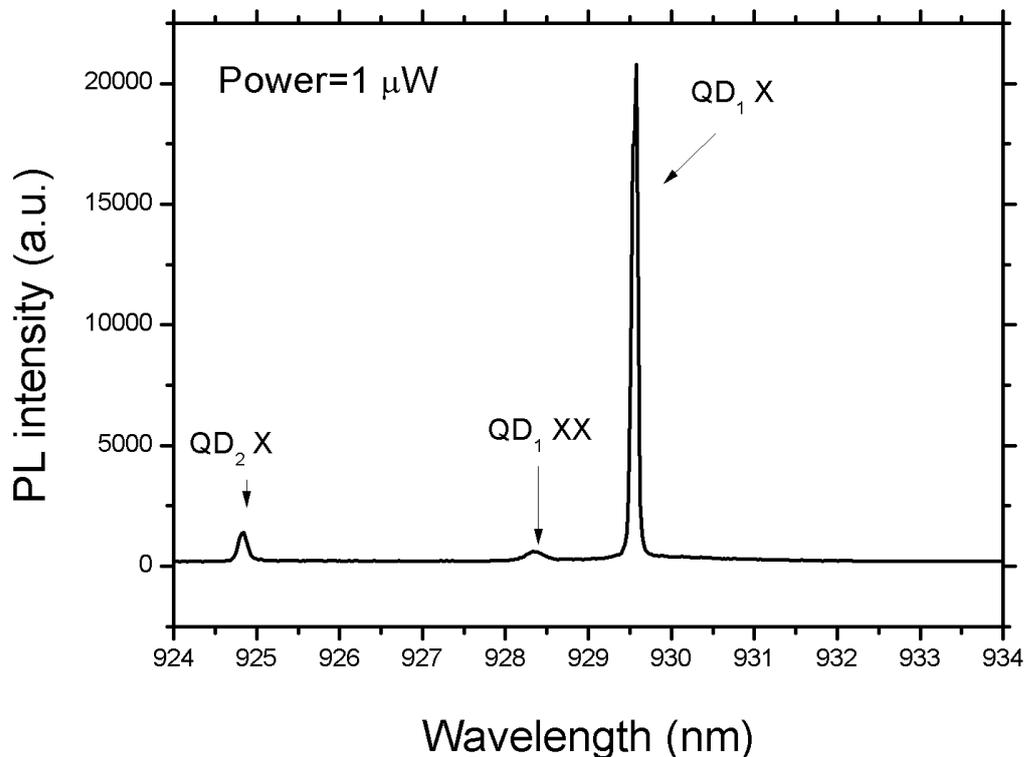


圖 4-7: Hole A 加上帶通濾鏡之後，積分時間 3 秒，注入雷射 1  $\mu$ W 的 PL 強度與波長關係圖。

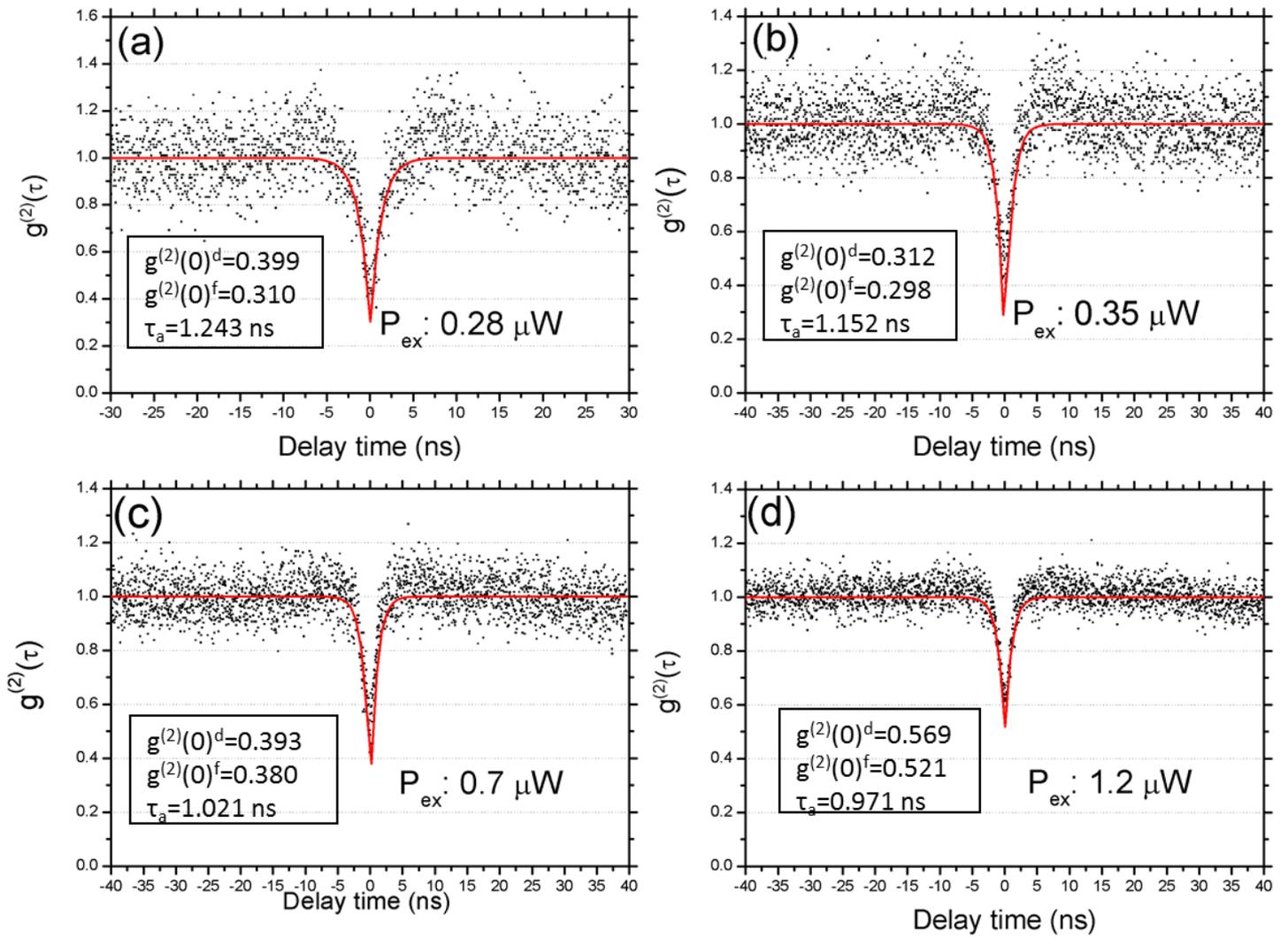


圖 4-8: Hole A 取 929.55 nm 譜線(QD<sub>1</sub>X)在不同雷射功率之二次相關性圖形。

## Hole B

Hole B 在選取 913.63 nm 的譜線也就是 QD<sub>1</sub> 的激子 X 做二次光子相關性實驗，圖 4-9 是 Hole B 加上帶通濾鏡之後，積分時間 3 秒，注入雷射 1  $\mu$ W 的 PL 強度與波長關係圖，圖中可發現第二個量子點 QD<sub>2</sub> 的激子與雙激子無法完全過濾，也是帶通濾鏡通過頻寬 10 nm 的緣故，因為 Hole B 的 QD<sub>1</sub>X 發光強度較 Hole A 的 QD<sub>1</sub>X 低，當雷射功率降低時，SPAD 每秒所偵測到的 counts 數降低，使得 SPAD 崩潰發光影響到實驗數據；圖 4-10 為 Hole B 在 913.63 nm 譜線(QD<sub>1</sub>X)在不同的雷射功率下產生的二次相關性圖形，如圖 4-10(a)，當注入雷射功率在 0.3  $\mu$ W 的時候，因為每秒偵測到的 count 數低於 1000，實驗圖形被 SPAD 崩潰發光所主宰，與原本的圖形相差非常大，呈現 M 字型， $g^{(2)}(0)$  已無法用公式正確地做出曲線擬合，在圖 4-10(b)，要在注入雷射功率為 0.5  $\mu$ W 時，擬合的圖形才跟數據較為接近，還可以看到  $g^{(2)}(0)$  兩側正負 5 ns 有隆起，表示 SPAD 崩潰發光還是產生計數影響數據，這時候實驗值  $g^{(2)}(0)^d$  為 0.681，曲線擬合值  $g^{(2)}(0)^f$  為 0.617，而 Hole B 最低二次相關性函數值是在雷射功率 0.65  $\mu$ W，如圖 4-10(c)，實驗值  $g^{(2)}(0)^d$  為 0.468，曲線擬合值  $g^{(2)}(0)^f$  為 0.399，為單光子純度最佳之時，而當雷射功率繼續增加時， $g^{(2)}(0)^f$  又開始上升，原因會在之後與 Hole A 一起做討論。

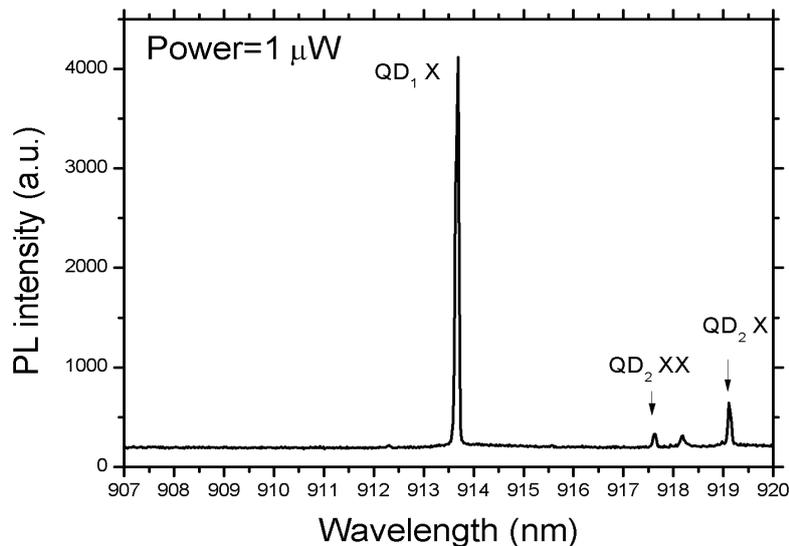


圖 4-9: Hole B 加上帶通濾鏡之後，積分時間 3 秒，雷射功率 1  $\mu$ W 的 PL 強度與波長關係圖。

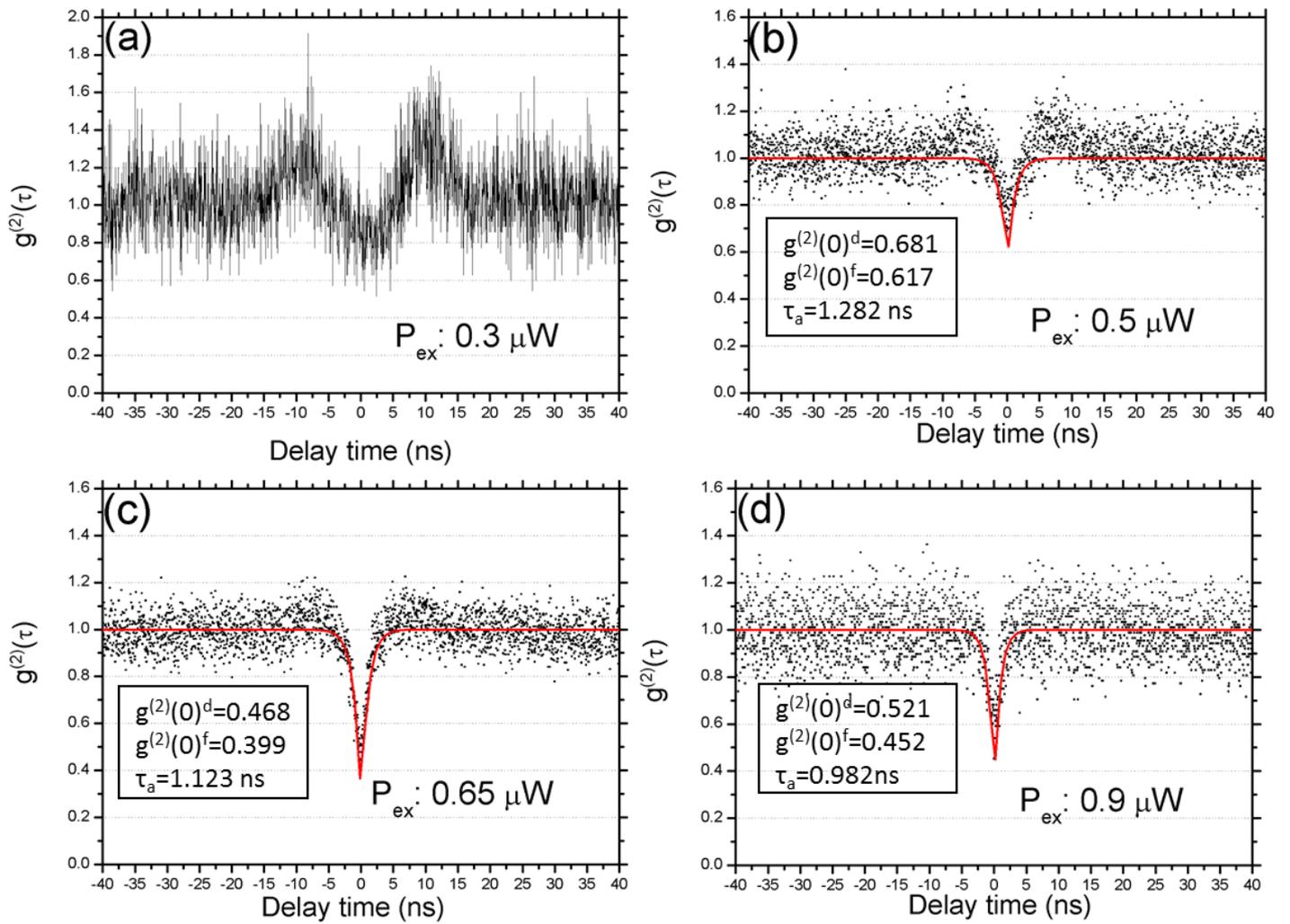


圖 4-10: Hole B 在 913.63 nm 譜線(QD<sub>1</sub>X)在不同雷射功率之二次相關性圖形。

從 Hole A 與 Hole B 的二次相關性函數圖形做比較分析，可發現兩種現象，第一、除了一開始因為崩潰發光使  $g^{(2)}(0)$  上升以外，在一般情況之下， $g^{(2)}(0)$  會隨著注入雷射功率增強而上升，圖 4-11 是 Hole A 和 Hole B 二次相關性函數零點擬合值  $g^{(2)}(0)^f$  與注入雷射功率的關係，無論是 Hole A 或 Hole B，除了一開始因為 SPAD 崩潰發光影響二次相關性之外， $g^{(2)}(0)^f$  皆因雷射功率而緩慢上升。第二、反群聚時間隨著雷射功率上升而有下降的趨勢，圖 4-12 是 Hole A 與 Hole B 反群聚時間  $\tau_a$  與注入雷射功率的關係，從圖中可看出 Hole A 與 Hole B 的反群聚時間隨著功率增加而下降，我們分別對這兩種現象做原因探討。

首先探討量子點光源的反群聚時間為何會隨著雷射功率上升而下降，圖 4-13 是量子點基子能階的速率模型[17]，能階 1 為無電子電洞的基態  $|0\rangle$ ，能階 2 為電子電洞對的激子態  $|X\rangle$ ，能階 3 為高能階  $|E\rangle$ ； $k_{13}$  為基態  $|0\rangle$  電子吸收雷射光子躍遷到高能階  $|E\rangle$  的速率， $k_{32}$  為電子從  $|E\rangle$  釋放能量到激子態  $|X\rangle$  的速率， $k_{21}$  為激子態  $|X\rangle$  電子與電洞復合產生單光子的速率，若能階佔據機率達到動態平衡，則

$$k_{13} = k_{32} + k_{21} = k_{32} + \frac{1}{\tau_a} \quad (4.1)$$

也就是基態電子吸收雷射光子躍遷到能階的速率  $k_{13}$ ，等於電子從  $|E\rangle$  釋放能量到  $|X\rangle$  的速率  $k_{32}$  加上  $|X\rangle$  電子與電洞復合回到  $|0\rangle$  產生單光子的速率  $k_{21}$ ，其中反群聚時間  $\tau_a$  是基態電洞復合產生單光子的速率  $k_{21}$  的倒數；又  $|0\rangle$  吸收雷射光子躍遷到能階的速率與注入雷射功率成正比，當注入雷射功率上升時， $k_{13}$  隨之上升， $k_{32}$  為定值不會因為雷射功率上升而改變，只有激發態電子與基態電洞復合產生單光子的速率  $k_{21}$  會因而上升，而反群聚時間為  $k_{21}$  的倒數反之下降，這就是反群聚時間隨著雷射功率上升而下降的原因。

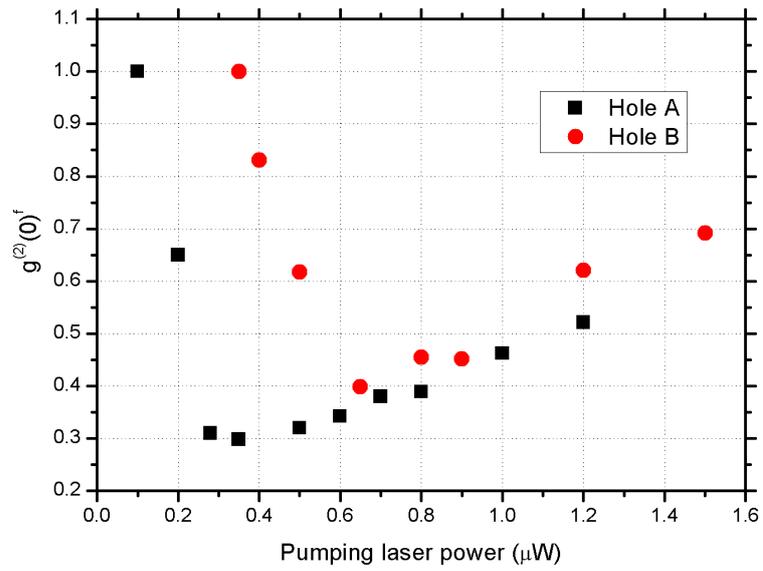


圖 4-11: Hole A 和 Hole B 二次相關性函數零點擬合值  $g^{(2)}(0)^f$  與注入雷射功率的關係圖。

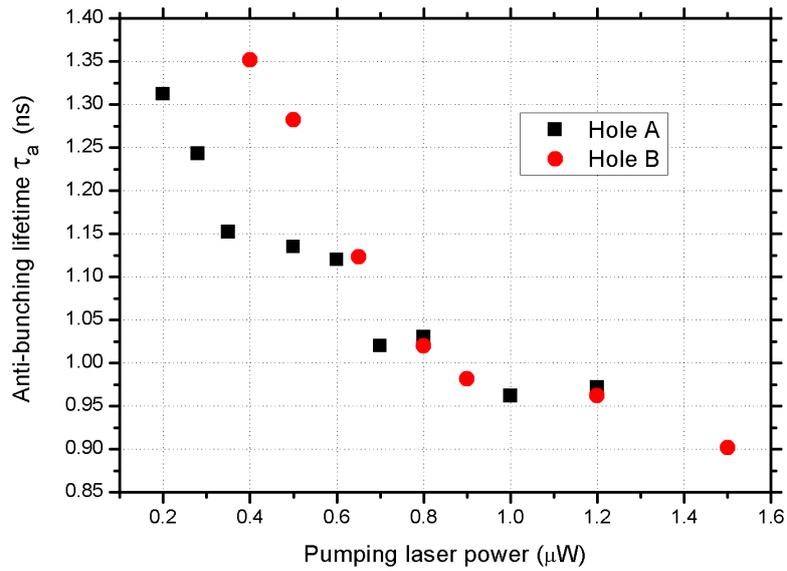


圖 4-12: Hole A 和 Hole B 反群聚時間  $\tau_a$  與注入雷射功率的關係圖。

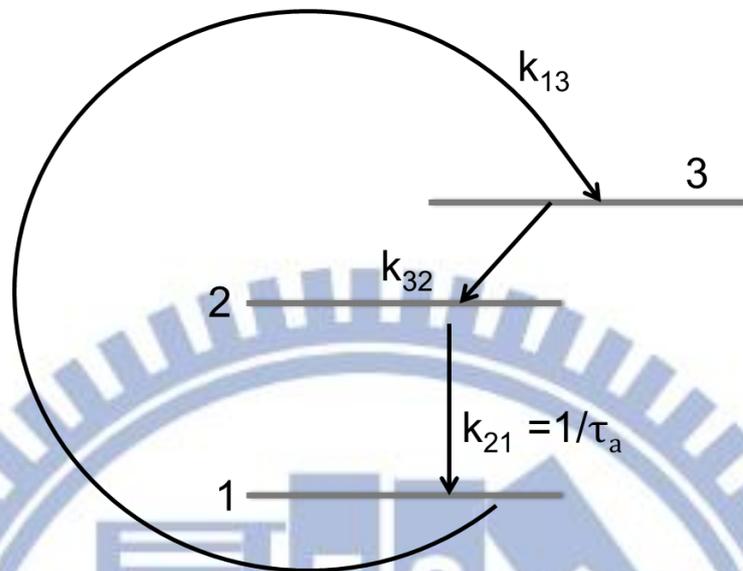


圖 4-13: 量子點三能階的速率模型，能階 1 為無電子電洞的基態 $|0\rangle$ ，能階 2 為電子電洞對的激子態 $|X\rangle$ ，能階 3 為高能階 $|E\rangle$ ； $k_{13}$  為基態 $|0\rangle$ 電子吸收雷射光子躍遷到高能階 $|E\rangle$ 的速率， $k_{32}$  為電子從 $|E\rangle$ 釋放能量到激子態 $|X\rangle$ 的速率， $k_{21}$  為激子態 $|X\rangle$ 電子與電洞復合產生單光子的速率[17]。

再來則要討論  $g^{(2)}(0)$  為何會隨著注入雷射功率的增強而上升，這也有兩個原因，第一個原因即為反群聚時間會隨著注入雷射功率的增強而下降，原本由連續激發模式雷射操作下單光子的模型為

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - ae^{-\frac{|\tau|}{\tau_a}} \quad (4.2)$$

$g^{(2)}(0)$  並不會因為反群聚時間的下降而有所改變，但當系統有解析度問題時，模型變成捲積公式：

$$G^{(2)}(\tau) = (g^2 \star b(\tau)) = \begin{cases} 1 - \frac{a\tau_a}{w} e^{-\frac{|\tau|}{\tau_a}} \left( e^{-\frac{w}{2\tau_a}} - e^{\frac{w}{2\tau_a}} \right) & |t| \leq w/2 \\ 1 + \frac{2a\tau_a}{w} - \frac{a\tau_a}{w} e^{-\frac{w}{2\tau_a}} \left( e^{\frac{|\tau|}{\tau_a}} + e^{-\frac{|\tau|}{\tau_a}} \right) & |t| > w/2 \end{cases} \quad (4.3)$$

代入  $\tau = 0$ ，

$$G^{(2)}(0) = 1 - \frac{a\tau_a}{w} \quad (4.4)$$

若  $a=0.5$ ,  $w=1$  ns,  $\tau_a$  從 1.2 ns 下降至 1 ns，這時  $G^{(2)}(0)$  會從 0.4 上升至 0.5，所以當反群聚時間  $\tau_a$  下降， $G^{(2)}(0)$  因而上升，這也是  $g^{(2)}(0)$  會隨著注入雷射功率的增強而上升的原因。

第二個原因為帶通濾鏡無法將其他量子點譜線完全濾除，當注入雷射功率上升時，來自於高階激子或其他量子點譜線的強度增強(見圖 4-2)，產生更多雜訊，訊雜比下降，參 2.2.4，導致  $g^{(2)}(0)$  上升，以 Hole A 在注入雷射 1  $\mu$ W 之下為例，圖 4-14 是 Hole A 加上帶通濾鏡之後，積分時間 3 秒，注入雷射 1  $\mu$ W 的 PL 強度與波長關係圖。我們以 QD1 X 為相關性實驗的訊號，得到  $g^{(2)}(0)^f=0.475$ ，QD1 XX 和 QD2 X 為雜訊，做譜線的積分後，訊號強度 S 為 1876.76，雜訊強度 B 為 284.90，帶入式(4.5)，其中  $\rho = \frac{S}{S+B} = 0.868$

$$g^{(2)}(0) = \frac{g^{(2)}(0)^f - (1-\rho^2)}{\rho^2} = 0.303 \quad (4.5)$$

所得到的  $g^{(2)}(0)$  與在低雷射功率 0.35  $\mu$ W 的擬合值相近，表示在高雷射功率下， $g^{(2)}(0)$  上升的主要原因為其他量子點的訊號影響。

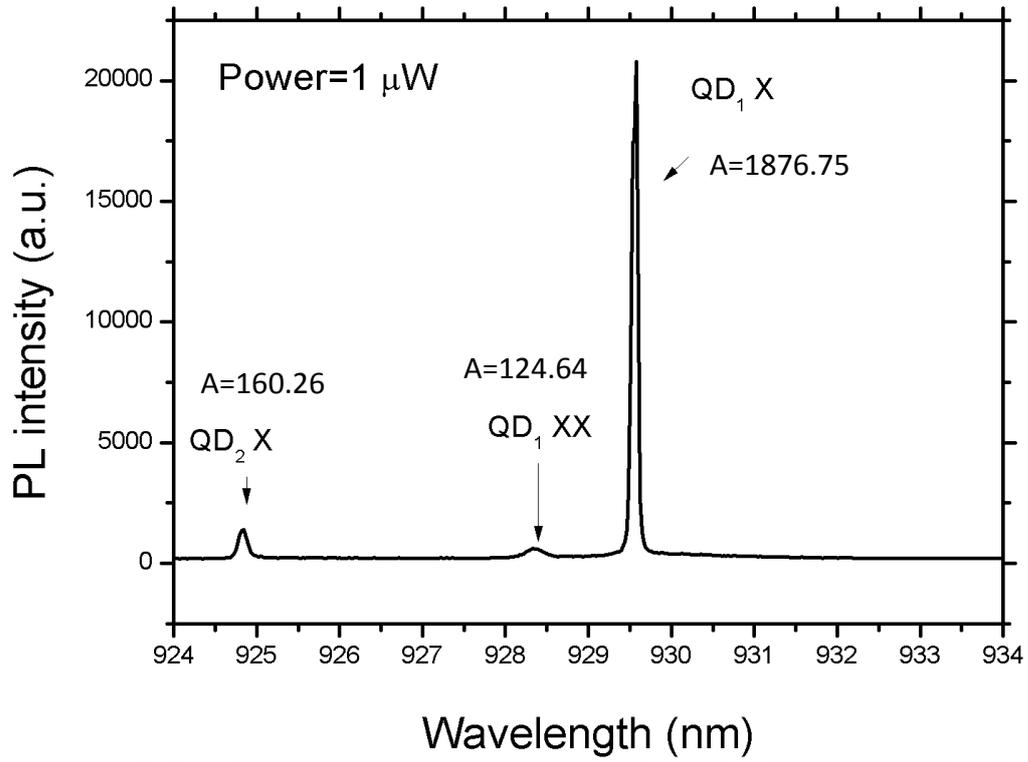


圖 4-14: Hole A 加上帶通濾鏡之後，積分時間 3 秒，注入雷射 1  $\mu$ W 的 PL 強度與波長關係圖。

## 4.2 在微共振腔中的量子點

本實驗所用的樣品是由李依姍學姐製作，為 MBE 成長量子點置於 DBR 結構中間主動區中，再蝕刻成微柱共振腔，詳細製程在 3.2.3 有做詳細說明，本樣品的微共振腔波長主要在 970 nm 附近，我們主要用 960~970 nm 的帶通濾鏡來篩選進入 HBT 的譜線做二次相關性實驗。我們在樣品中找出兩個發光強度最強的微柱共振腔來進行 HBT 量測，為了方便起見，我們將其命名為 Pillar A 與 Pillar B。

### 4.2.1 溫度相依關係(Temperature dependence)

在做二次相關性實驗之前，必須做變溫的顯微光激螢光實驗，目的是為了找出共振腔與其附近的量子點共振的溫度，也是為了分辨量子點與共振腔耦合的關係是強耦合效應弱耦合效應(參考 3.2.1)。

#### Pillar A

微柱共振腔的共振模態(cavity mode)波長和量子點譜線的波長會隨著溫度而改變，量子點變化幅度是共振模態的數倍，變溫 PL 量測可以先分辨譜線的來源，圖 4-15 是 Pillar A 在不同溫度時積分 3 秒的 PL 強度與溫度關係圖，在圖中溫度 12 K 時在波長 964.9 nm 處有強度大約 3000 counts 的譜線，在波長 965.35 nm 處有峰值強度大約 25000 counts 的譜線，隨著溫度的提升，964.9 nm 的譜線波長改變的幅度較大，約 0.06 nm/K，而 965.35 nm 的譜線變化幅度只有 0.01 nm/K，推論 964.9 nm 的譜線為量子點的輻射，965.35 nm 譜線為共振腔模態，將其峰值波長對溫度變化做整理如圖 4-16(a)所示，由圖中可以確認量子點跟共振腔之間耦合程度，參 3.2.1，我們知道當強耦合效應發生時，會產生 Rabi 震盪，這時量子點的激子和共振模態會產生能階分裂，我們觀察變溫 PL 圖時，就算量子點與共振腔模態輻射達到共振溫度，量子點和共振模態的譜線會保持分裂狀態，我們知道顯微光激螢光實驗感光元件其解析度為 0.023 nm，從圖 4-16(a)就可得知量子點從 965.31 nm 到 965.68 nm 之間都無法分辨其與共振腔模態的譜線，表示這不

是因為系統解析度的影響，圖 4-16(b) 是量子點與共振腔模態不同溫度其半高寬的變化，若發生強耦合效應，量子點與共振腔模態在快要發生強耦合效應時半高寬也會逐漸接近，但從圖中量子點與共振腔模態的半高寬並沒有貼近，推論此微柱共振腔與量子點為弱耦合效應的範疇，在弱耦合狀態，會因為 Purcell effect，增加自發性輻射效率，圖 4-17 是 Pillar A 量子點與共振腔模態不同溫度其譜線積分強度的變化，可知 PL 強度最大值是在絕對溫度 20 K 的時候，之後會在 20 K 時做 HBT 量測，此微柱共振腔 Q 值為 6436，Purcell factor 為 1.251。除此之外，共振腔模態譜線的周圍還有別的量子點存在，像是圖 4-15 在溫度 12 K 時共振腔模態右邊的量子點譜線。

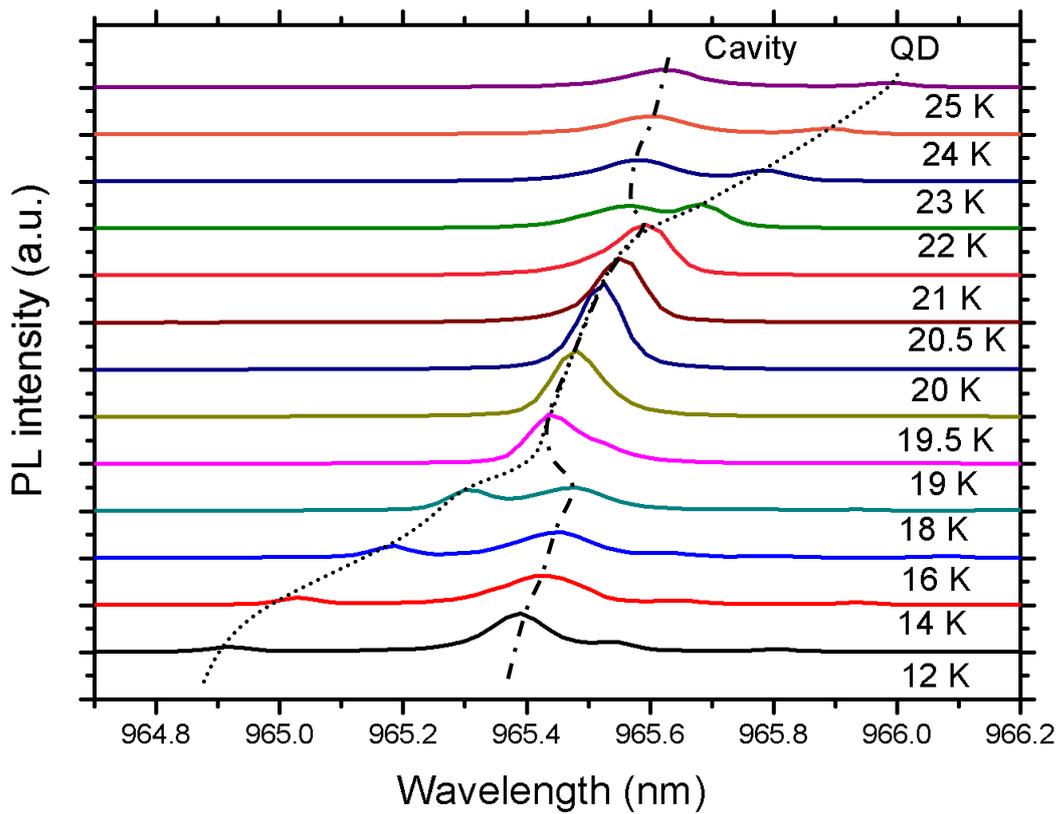


圖 4-15: Pillar A 在不同溫度時積分 3 秒的 PL 強度與溫度關係圖。

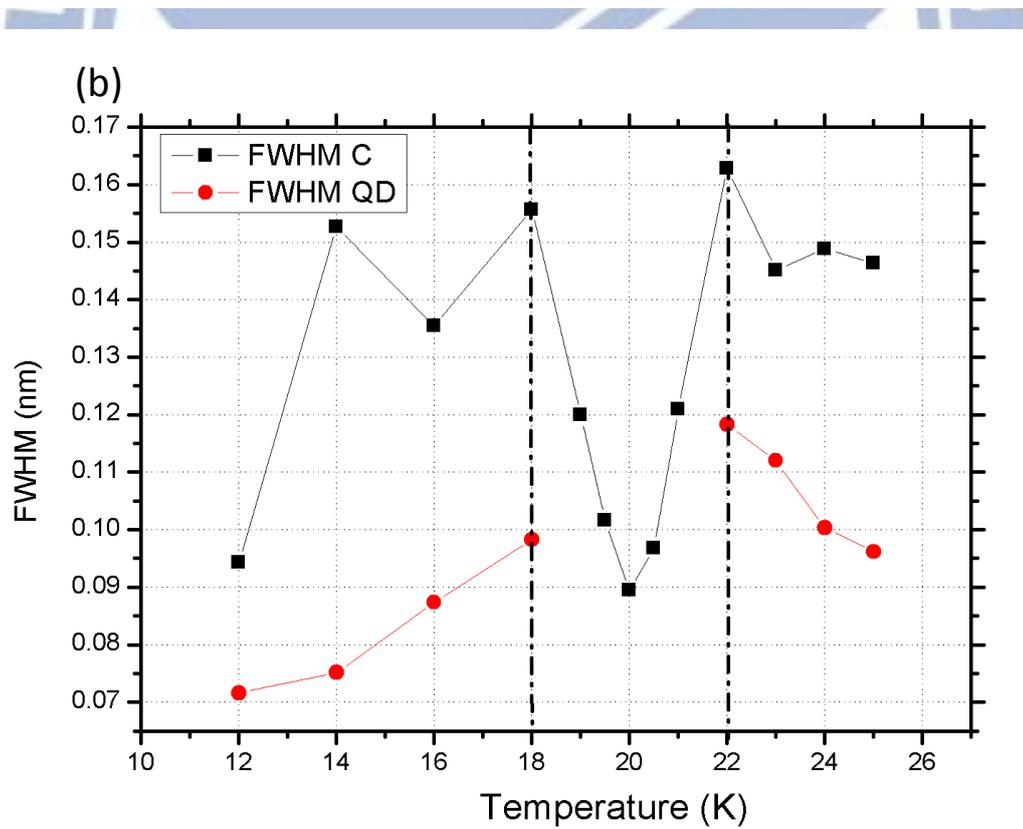
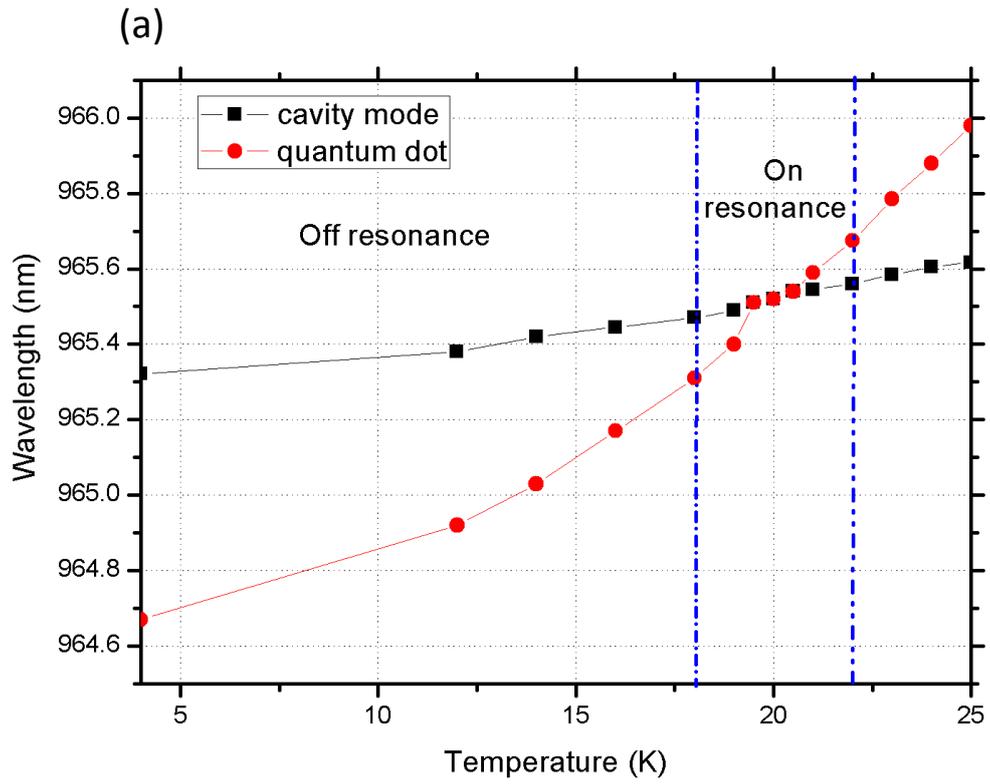


圖 4-16: Pillar A (a)量子點與共振腔模態不同溫度其波長的變化;(b)量子點與共振腔模態不同溫度其半高寬的變化。

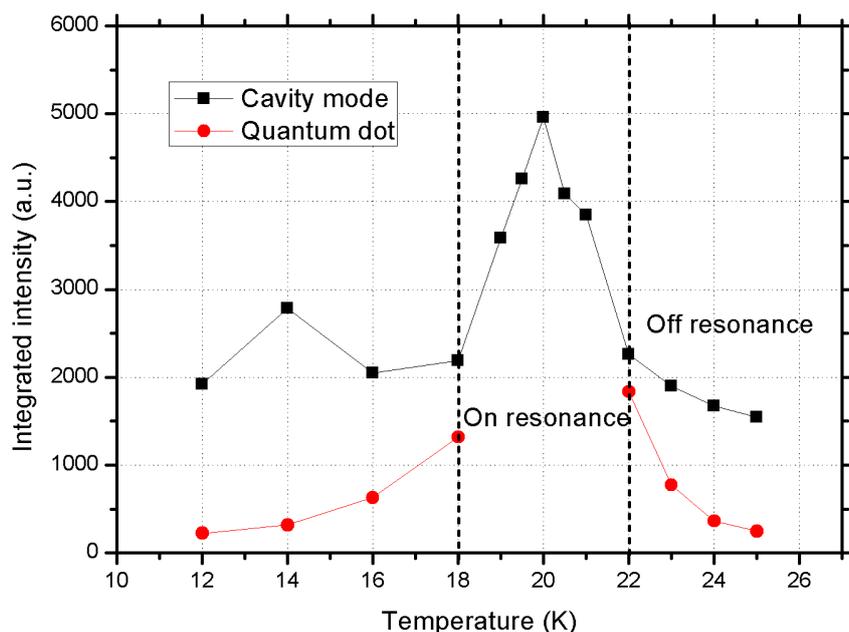


圖 4-17: Pillar A 量子點與共振腔模態不同溫度其譜線積分強度的變化。

## Pillar B

Pillar B 的溫度相依關係與 Pillar A 相似，但 Pillar B 的在共振溫度時 PL 強度為 Pillar A 的兩倍，圖 4-18 是 Pillar B 在不同溫度時積分 3 秒的 PL 強度與波長關係圖，在圖中溫度 10 K 時在波長 968.68 nm 處有強度大約 6000 counts 的譜線，隨著溫度的提升，968.68 nm 的譜線波長改變的幅度較大，約 0.038 nm/K，在波長 969.03 nm 處有強度大約 18000 counts 的譜線，969.03 nm 的譜線變化幅度較小，只有 0.0083 nm/K，我們推論 968.68 nm 的譜線為量子點，969.03 nm 的譜線為共振腔模態，圖 4-19(a) 為其量子點與共振腔模態在不同溫度其波長的變化圖，跟 Pillar A 步驟相同，我們要確認量子點跟共振腔之間耦合程度，從 20 K 到 30 K 之間，皆無法分辨量子點與共振腔模態的譜線，圖 4-19(b) 為量子點與共振腔模態不同溫度其半高寬的變化，與 Pillar A 相同，量子點的半高寬在快要接近共振溫度時並無與共振腔模態的半高寬接近，推論微柱共振腔與量子點為弱耦合效應的範疇，此共振腔 Q 值為 8075，Purcell factor 為 1.159。圖 4-20 是 Pillar B 量子點與共振腔模態不同溫度其譜線積分強度的變化圖，從圖可知積分強度

最強是在絕對溫度 23.5 K 的時候，判斷其共振溫度為 23.5 K。

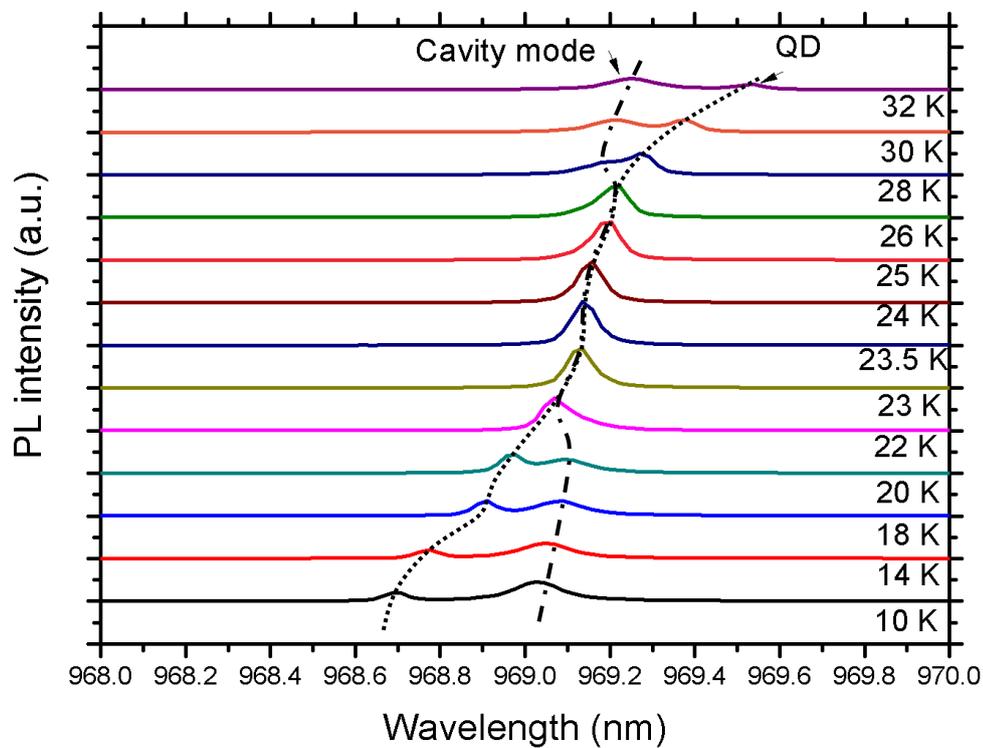


圖 4-18: Pillar B 在不同溫度時積分 3 秒的 PL 強度與波長關係。

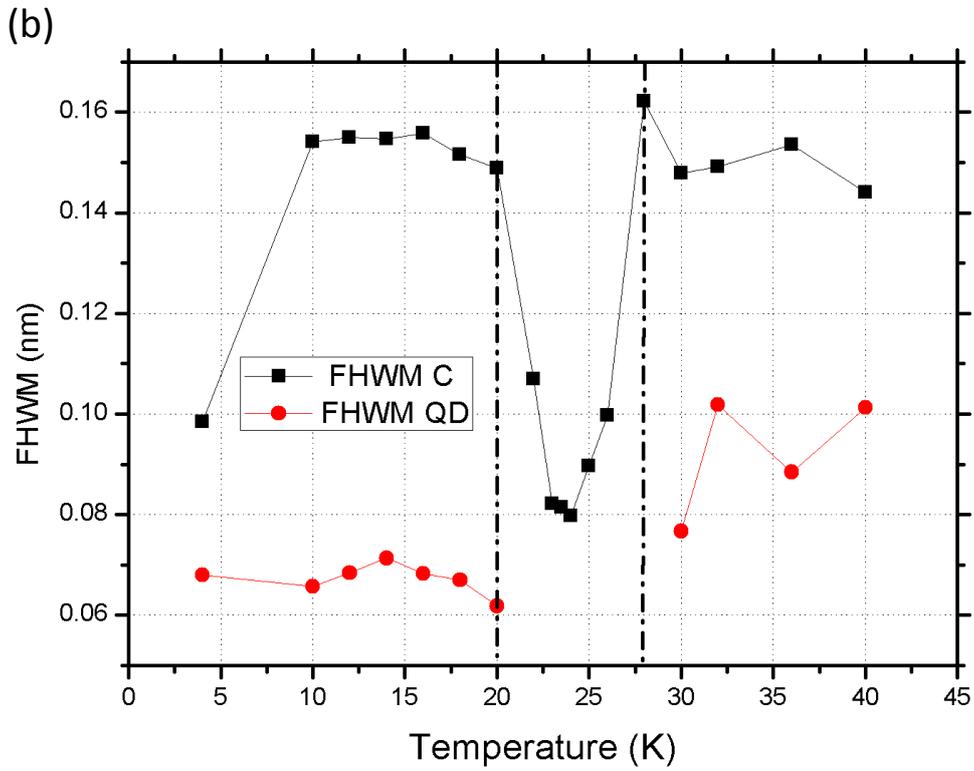
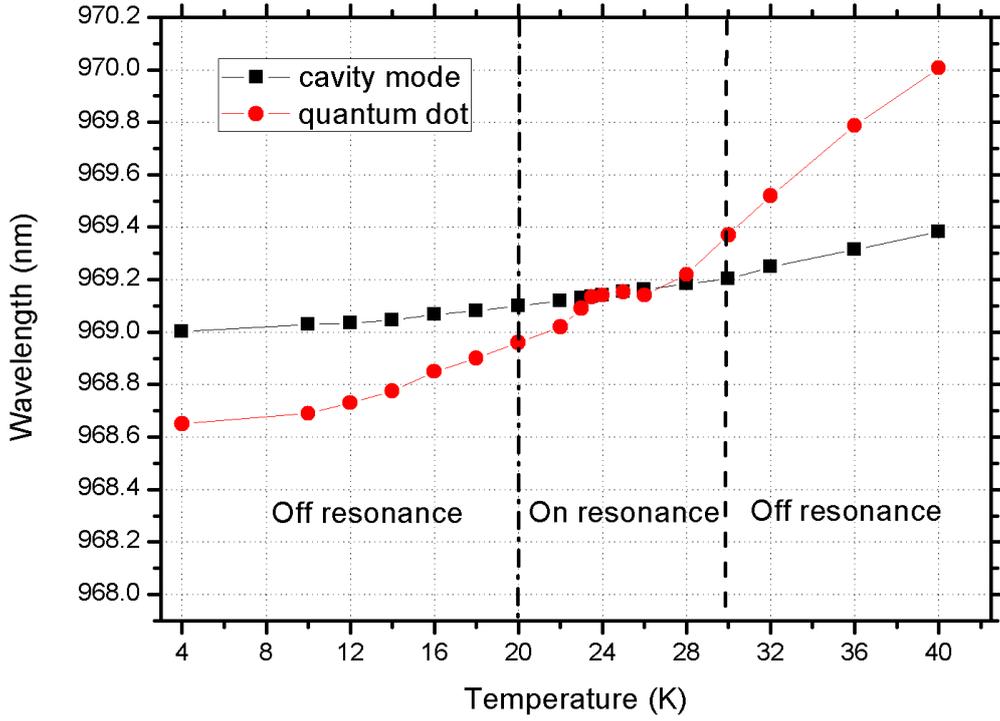


圖 4-19: (a) Pillar B 量子點 QD 與共振腔模態 C 不同溫度其波長的變化;(b)量子點與共振腔模態不同溫度其半高寬的變化。

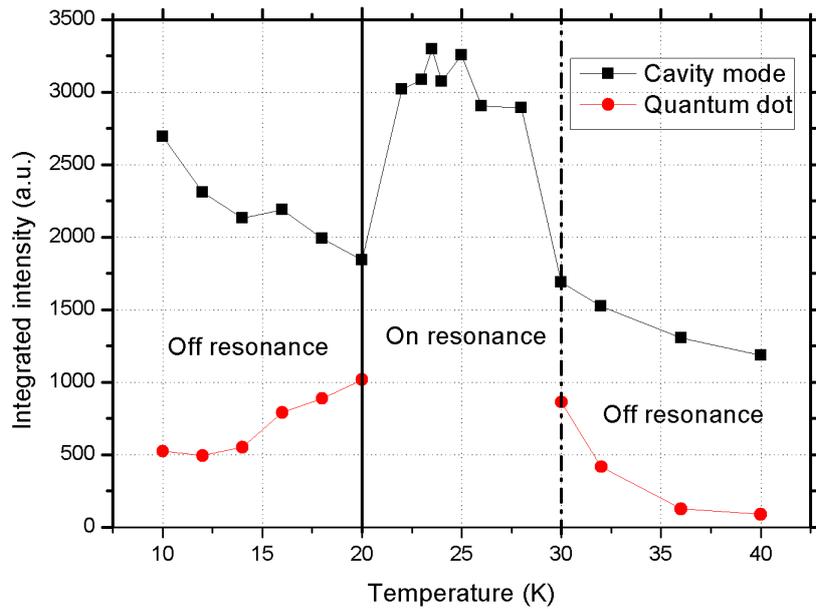


圖 4-20: Pillar B 量子點與共振腔模態不同溫度其譜線積分強度的變化。

#### 4.2.2 強度相依關係(Power dependence)

在微柱共振腔的強度相依關係主要有兩個部分，在共振溫度時的強度相依關係和非共振溫度時的強度相依關係，在非共振溫度時，量子點的譜線與共振腔模態譜線沒有耦合在一起，可以用量子點的譜線強度與雷射功率做次方項分析，判斷為激子雙激子，共振腔的強度相依關係去判斷雷射是否到達閾值。

#### Pillar A 在非共振溫度 4 K

首先我們先觀察在非共振溫度 4 K 時，不同注入雷射功率下的 PL 強度與波長的關係如圖 4-21，在波長 964.67 nm 的譜線在 20 K 時會與共振腔模態耦合，在 4 K 時離共振腔模態譜線還有 0.65 nm 的距離，這時對積分強度與注入雷射功率做次方項分析，如圖 4-22 所示，其次方項為 1.183，推測此量子點的譜線為單激子，共振模態的次方項為 1.239 另一方面，觀察在波長 964.67 nm 共振腔模態在 4 K 溫度時，與其他量子點耦合

現象，從圖 4-21 知雷射功率  $2 \mu\text{W}$  時就可以明顯觀察共振腔模態譜線的兩側各有一個量子點。

### Pillar A 在共振溫度 20 K

圖 4-23 為在溫度 20 K 下，不同注入雷射功率下的 PL 強度與波長的關係圖，原本在 964.67 nm 的量子點紅移到共振腔模態的波長與其耦合，使其發光強度增強至原本的 23 倍，這可以用 Purcell Effect 來解釋，而增強的效率可以與量子點在微柱中心的距離有關，量子點離中心越近，增強的效率越高，同調時間越長；圖 4-24 是量子點與共振腔模態共振時雷射功率與譜線積分強度關係圖，我們從圖中無法判斷雷射是否到達閾值。

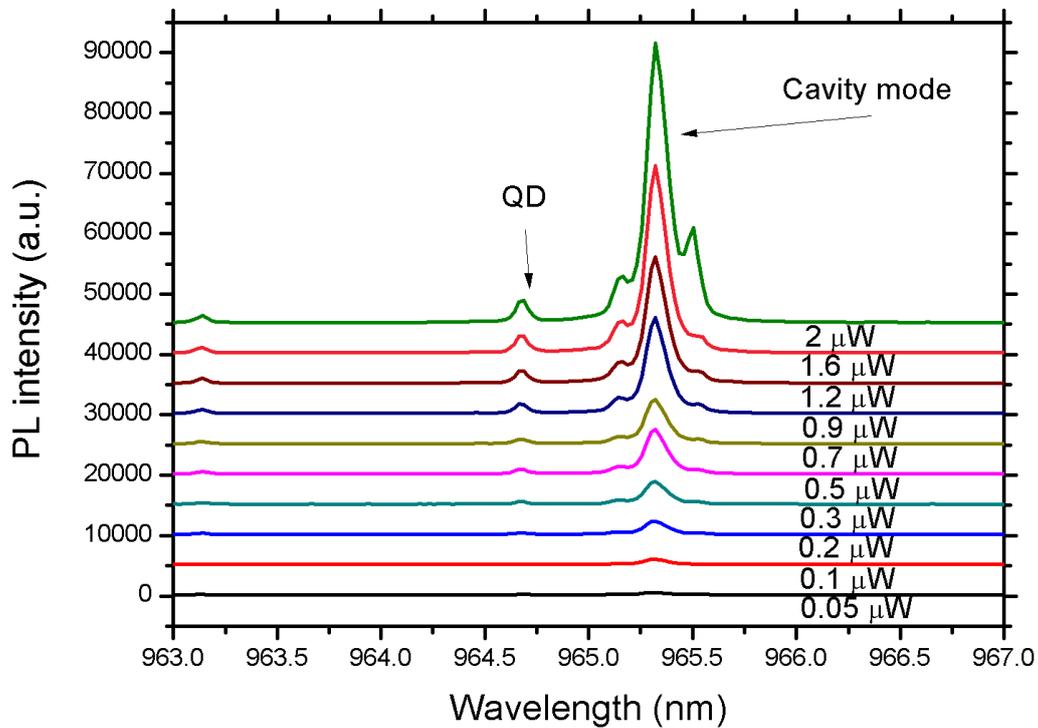


圖 4-21: Pillar A 在 4 K 下，不同注入雷射功率下的 PL 強度與波長關係圖。

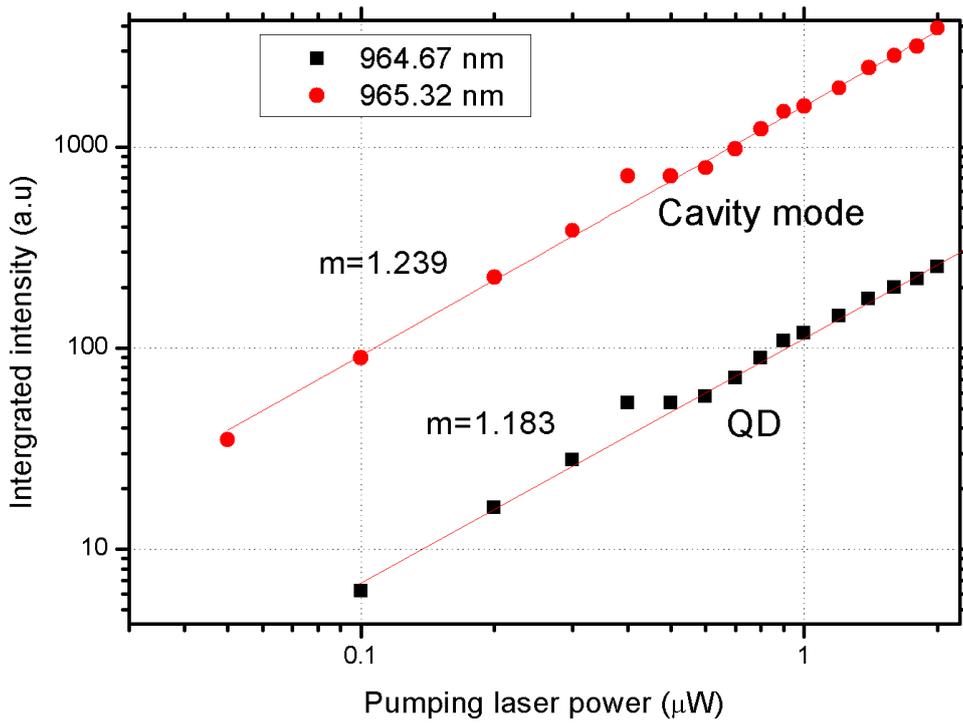


圖 4-22: Pillar A 在非共振溫度 4 K 下不同波長譜線的雷射功率與譜線積分強度關係。

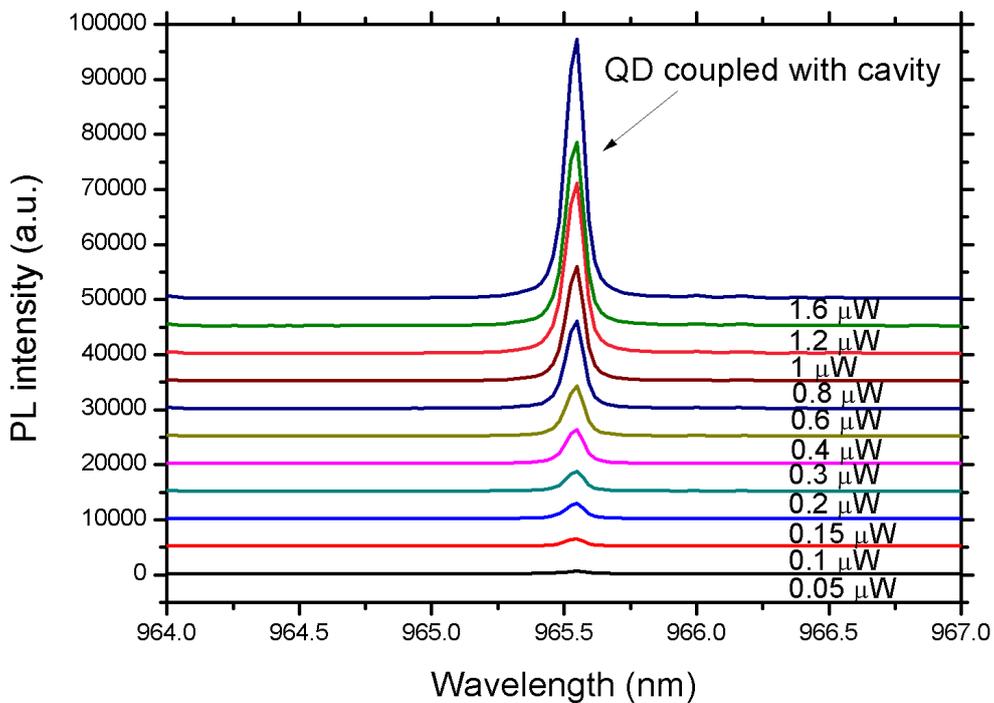


圖 4-23: Pillar A 在 20 K 下，不同雷射功率下的 PL 強度與波長關係圖。

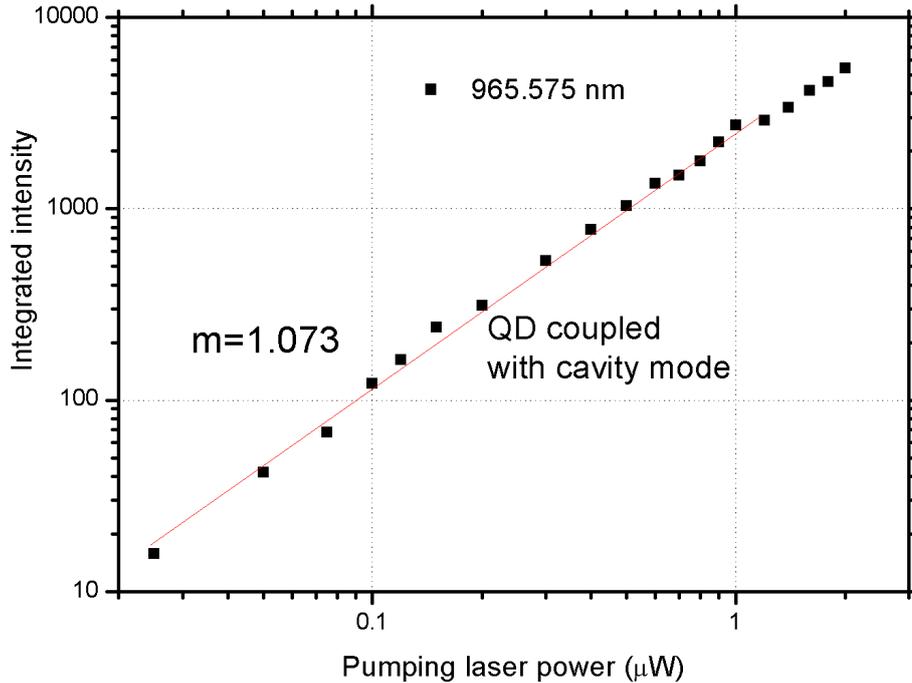


圖 4-24: Pillar A 在共振溫度 20 K 下量子點與共振腔模態耦合時雷射功率與譜線積分強度關係。

#### Pillar B 在非共振溫度 4 K

Pillar B 的發光效率強度是所有量測到的微柱共振腔發光強度最強的，因為量子點在還沒有耦合時，本身就比其他量子點譜線強度還高，圖 4-25 是在絕對溫度 4 K 之下，不同雷射功率之下的 PL 強度與波長關係圖，此時量子點的波長 968.65 nm，在雷射功率在 2 μW 時，量子點的峰值就達到 4000 counts 每秒，相對而言這時共振腔模態沒有跟其他量子點的譜線共振，在波長 969 nm 的共振腔模態的峰值強度還沒有 Pillar A 在溫度 4 K 時高，圖 4-26 是在 4 K 下不同波長譜線的雷射功率與譜線積分強度關係圖。波長 969 nm 為共振腔模態，其因次分析的次方項值，也就是圖中的斜率為 0.977，圖中無法觀察出其雷射的閾值(threshold)，有兩種可能性，第一種可能是就算到了雷射功率 2 μW 沒有到閾值，第二種可能性是其為無閾值共振腔雷射(non-threshold cavity laser)，波長 968.65 nm 為量子點輻射，其因次分析項為 1.339，介於激子與雙激子之間，我們暫時無法辨別其為激子還是雙激子，因為儀器限制，我們的帶通濾鏡通過波長寬度

是 10 nm，也會將其他量子點訊號包容進來，只要其共振時發光效率夠高，將其他量子點的訊號蓋過去，其他量子點造成的雜訊就不會對二次相關性函數產生太大影響。

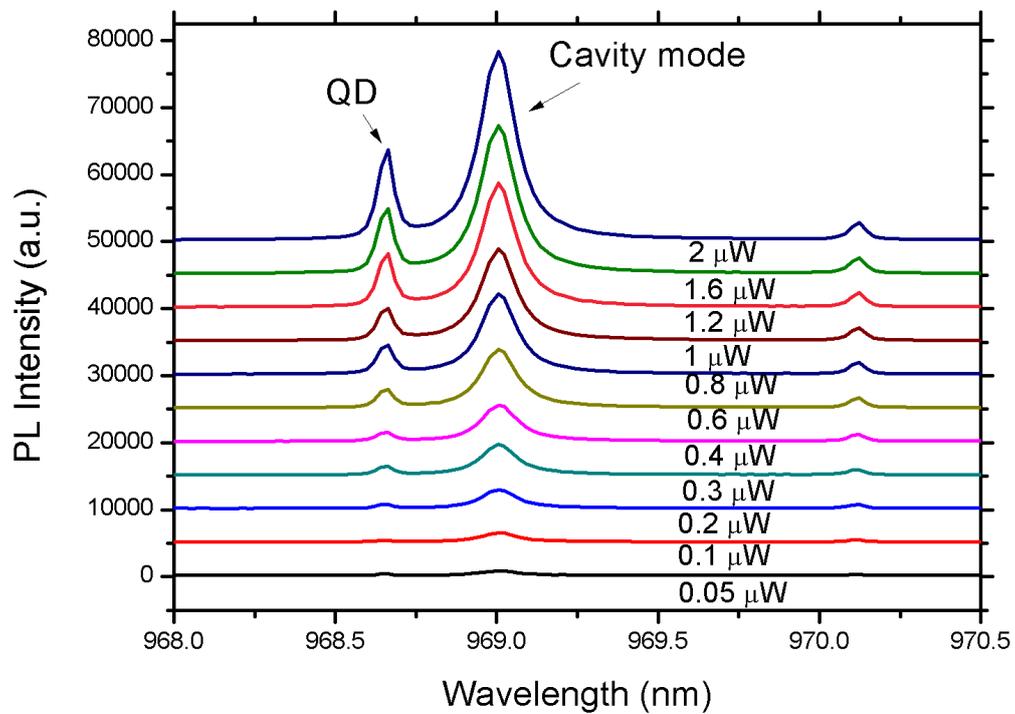


圖 4-25: Pillar B 4 K 下，不同注入雷射功率下的 PL 強度與波長關係圖。

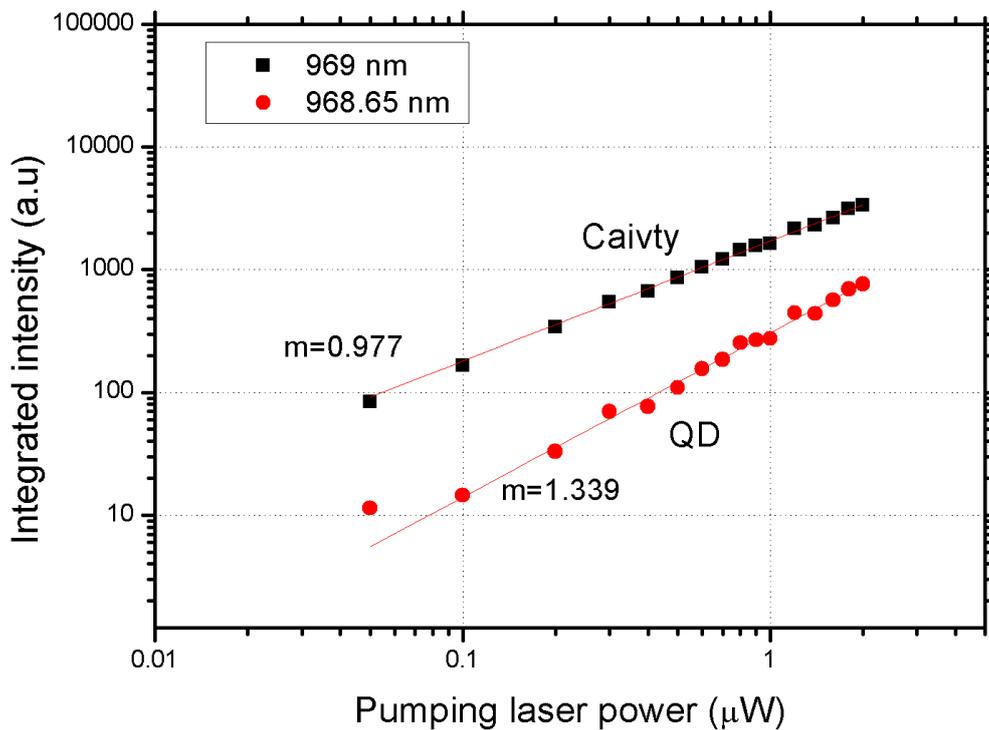


圖 4-26: Pillar B 在 4 K 下不同波長譜線的注入雷射功率與譜線積分強度關係圖。

### Pillar B 在共振溫度 23.5 K

在分析完非共振溫度 4 K 的強度相依關係之後，現在要分析在共振溫度 23.5 K 時，Pillar B 的強度相依關係，圖 4-27 是 Pillar B 在 23.5 K 下，不同注入雷射功率下的 PL 強度與波長關係圖，在共振條件之下，此微柱共振腔強度是所有量測到的量子點耦合共振腔中最強的，其在 2 μW 下的峰值強度，可以達到每秒 37000 counts，因此，共振腔模態旁邊的量子點譜線相較於共振腔幾乎可以忽略，使其影響二次相關性函數的數據圖形較小。圖 4-28 是 Pillar B 在 23.5 K 下量子點與共振腔模態共振時在波長 969.1 nm 雷射功率與譜線積分強度關係圖，與 Pillar A 相同，無法分析到其閾值的存在。

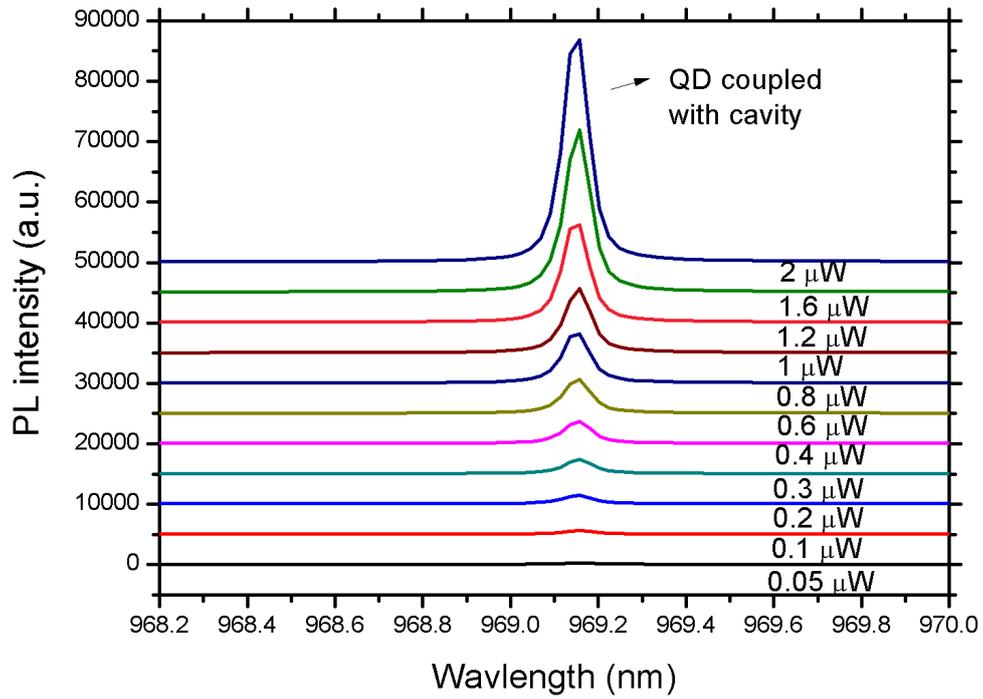


圖 4-27: Pillar B 在溫度 23.5 K 下，不同注入雷射功率下的 PL 強度與波長關係圖。

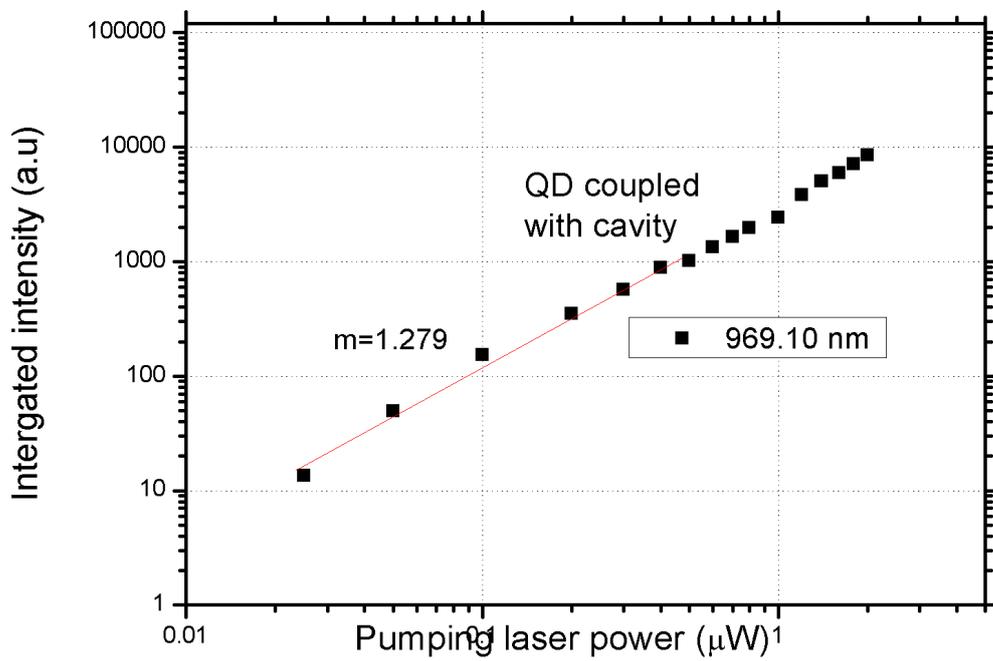


圖 4-28: Pillar B 在 23.5 K 下量子點與共振腔模態耦合時雷射功率與譜線積分強度關係圖。

### 4.2.3 二次相關性函數

微柱共振腔與量子點耦合時的二次相關性函數與光窗內的量子點不同，原本為理想單光子源的量子點激子或雙激子譜線，與共振腔模態共振之後，經由弱耦合效應增強其自發輻射效率，基本上這兩個微共振腔模態與量子點耦合時的二次相關性函數圖形變化的趨勢為相同的，一開始當雷射功率非常低時， $g^{(2)}(0)$ 接近零點，光子之間的反群聚效應明顯，為一個理想的單光子源，當雷射功率逐漸增加時， $g^{(2)}(0)$ 也慢慢增加，最後大於 1，產生光子之間的群聚現象，在延遲時間為 0 的點，偵測器同時偵測到兩個光子的機率高於其他延遲時間的點。實際上因為 SPAD 崩潰發光的影響，SPAD 崩潰發光產生的光子相關性主宰著二次相關性函數圖形，無法真正量測到樣品光源本身的光子相關性(參 4.1.2)。

#### 共振溫度下時

首先我們對這兩個微柱共振腔在共振溫度時做二次相關性函數量測，從上節我們知道 Pillar A 的共振溫度是絕對溫度 20 K，圖 4-29 是 Pillar A 加上帶通濾鏡之後，注入雷射功率  $0.5 \mu\text{W}$  的 PL 強度與波長關係圖，從圖中可知量子點與共振腔模態耦合之後，強度增強，使得其他量子點的訊號相對較低，不太會受到其他未耦合的量子點影響，而圖 4-30 是 Pillar A 在不同雷射功率下量測到的二次相關性函數圖形，圖 4-30(a)到(b)我們可以看到  $g^{(2)}(0)$ 圖形的變化，谷底的深度慢慢上升，趨近於平坦，再慢慢的隆起，物理的意義就是原本單光子產生的光子反群聚現象[18]，隨著輸入雷射功率增強之下，產生多光子群聚現象，原因是在微柱共振腔內，在還沒有到達雷射閾值時，屬自發性輻射，這由共振腔內的量子點所主宰，到閾值附近時，因為要從自發性輻射相位轉換成雷射的關係[19]，多光子相關機率會劇烈增加。這種在雷射閾值附近的光子群聚行為特性不管在一般的雷射[20]、共振腔雷射、甚至無閾值雷射都有出現，因為在雷射從自發性輻射轉化到雷射時，有一段類似發光二極體狀態[21]，此時光場相位與同調性皆較雷射差，屬於熱輻射光源(thermal light source)，二次相關性函數大於 1，圖 4-31 是 Pillar A 在共

振溫度 20K 下， $g^{(2)}(0)$ 與注入雷射功率的關係圖，從圖中在  $0.05 \mu\text{W}$ ， $g^{(2)}(0)$ 接近 1，在前面提過是因為 SPAD 崩潰發光的影響，此影響使我們無法量測到實驗上最低的  $g^{(2)}(0)$ 值，無法真正了解此單光子源純度，當注入雷射功率增加，訊號光源大於崩潰發光  $g^{(2)}(0)$ 隨之下降，在  $0.25 \mu\text{W}$  之下，有  $g^{(2)}(0)$ 最小值，實驗值  $g^{(2)}(0)^d$  為 0.312，擬合值  $g^{(2)}(0)^f$  為 0.283，距離理想單光子光源還有一段差距，隨著注入雷射功率提高就繼續向上攀升，到  $0.6 \mu\text{W}$  以上， $g^{(2)}(0)$ 開始大於 1，可推論微共振腔雷射到達閾值附近，產生 LED 熱輻射光源狀態，到相位轉化期，產生光子群聚現象，若注入雷射功率不斷加大，會進入雷射狀態，那時光子間產生同調性，最後  $g^{(2)}(0)$ 趨近於 1，呈現帕松分布。

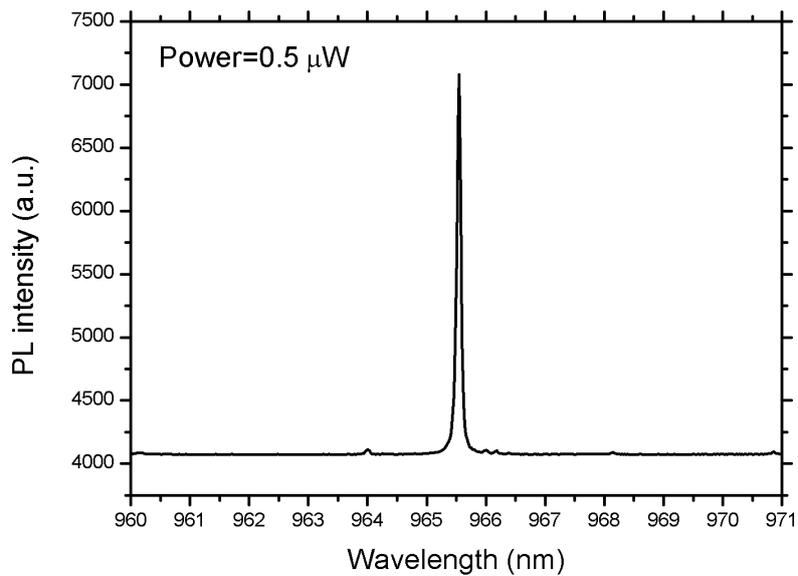


圖 4-29: Pillar A 加上帶通濾鏡之後，注入雷射功率  $0.5 \mu\text{W}$  的 PL 強度與波長關係圖。

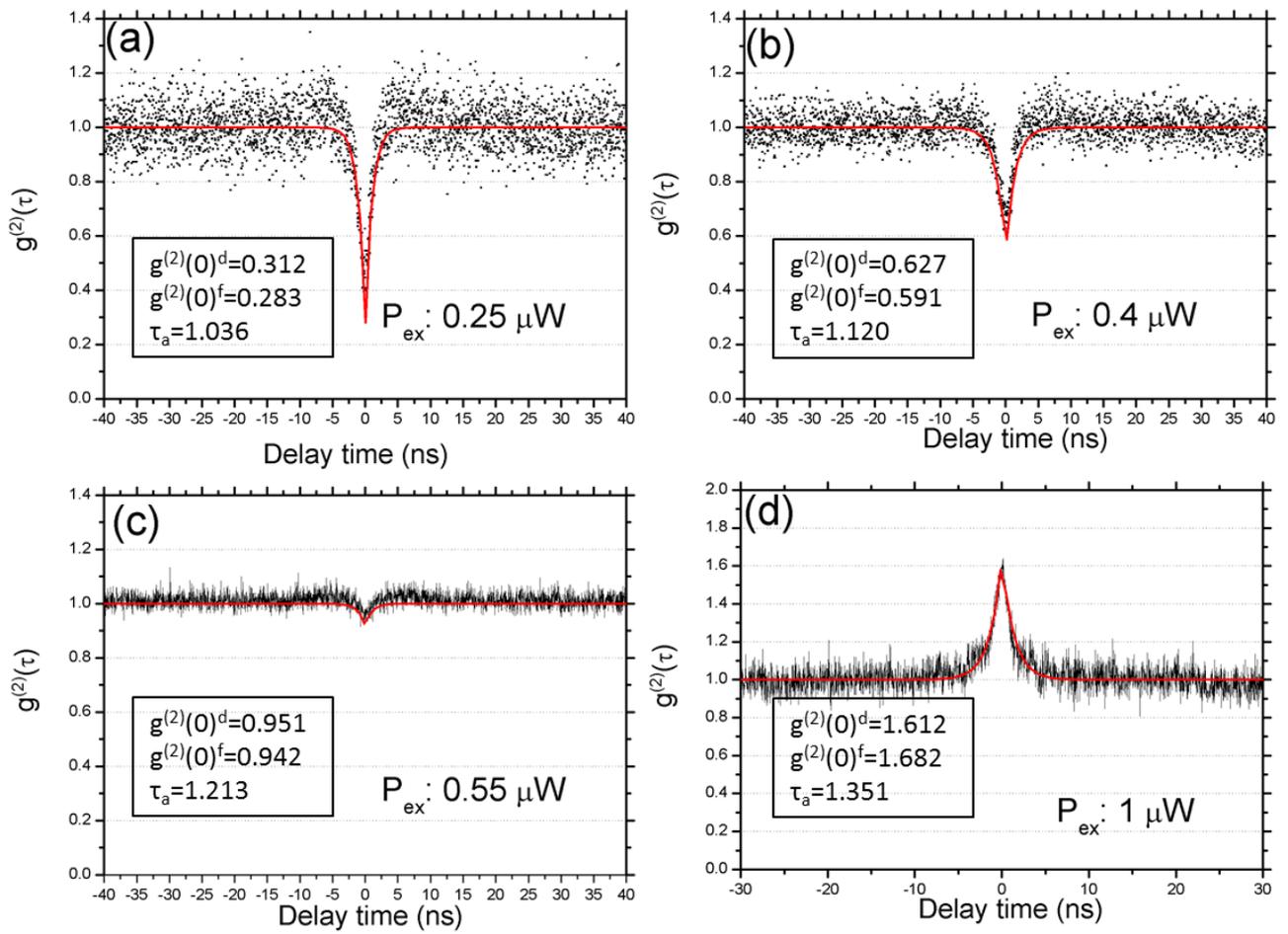


圖 4-30: Pillar A 在共振溫度 20 K 下，單位時間為 33 ps，積分 500 秒，不同雷射功率下量測到的二次相關性函數圖形。

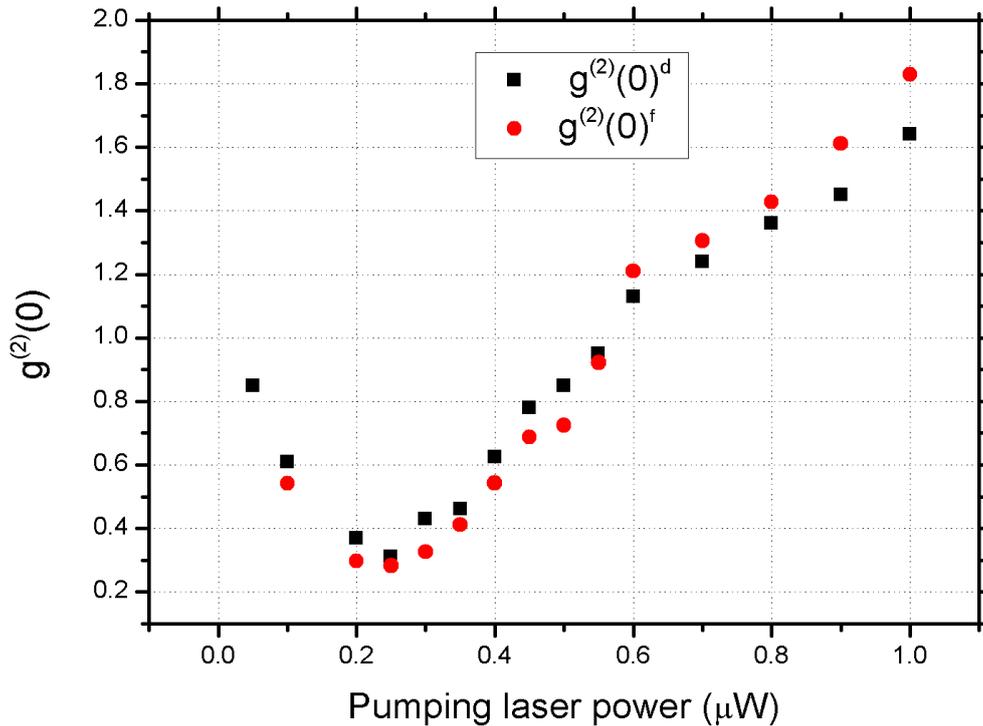


圖 4-31: Pillar A 在共振溫度 20 K 下,  $g^{(2)}(0)$  與注入雷射功率的關係圖, 黑色方塊為實驗值  $g^{(2)}(0)^d$ ; 紅色圓點是數據擬合值  $g^{(2)}(0)^f$ 。

接下來分析 Pillar B 在共振溫度 23.5 K 下的二次相關性圖形, 圖 4-32 是 Pillar B 加上帶通濾鏡之後, 注入雷射功率 0.5  $\mu\text{W}$  的 PL 強度與波長關係圖, 圖 4-33 是 Pillar B 在共振溫度 23.5 K 下, 不同雷射功率下量測到的二次相關性函數圖形, 與 Pillar A 結果幾乎相同, 只是因為 Pillar B 與量子點耦合發光強度較強, 在注入雷射功率較小的情況下, 訊號就比崩潰發光的雜訊強, 能取得  $g^{(2)}(0)$  最低值, 如圖 4-32(b), 在 0.2  $\mu\text{W}$  下, 實驗值  $g^{(2)}(0)^d=0.251$ , 擬合值  $g^{(2)}(0)^f=0.201$ , SPAD 間兩個光子相關機率最低, 反群聚現象最強的時候, 圖 4-34 是 Pillar B 在共振溫度 23.5 K 下,  $g^{(2)}(0)$  與注入雷射功率的關係圖, 黑色方塊為實驗值  $g^{(2)}(0)^d$ ; 紅色圓點是數據擬合值  $g^{(2)}(0)^f$ , 與 Pillar A 相比, Pillar B  $g^{(2)}(0)$  的最小值比 Pillar A 發生在更低的注入雷射功率時, 而  $g^{(2)}(0)$  上升的速度也較 Pillar A 快, 可以推論 Pillar B 較 Pillar A 更快進行相位轉換出現光子群聚現象。

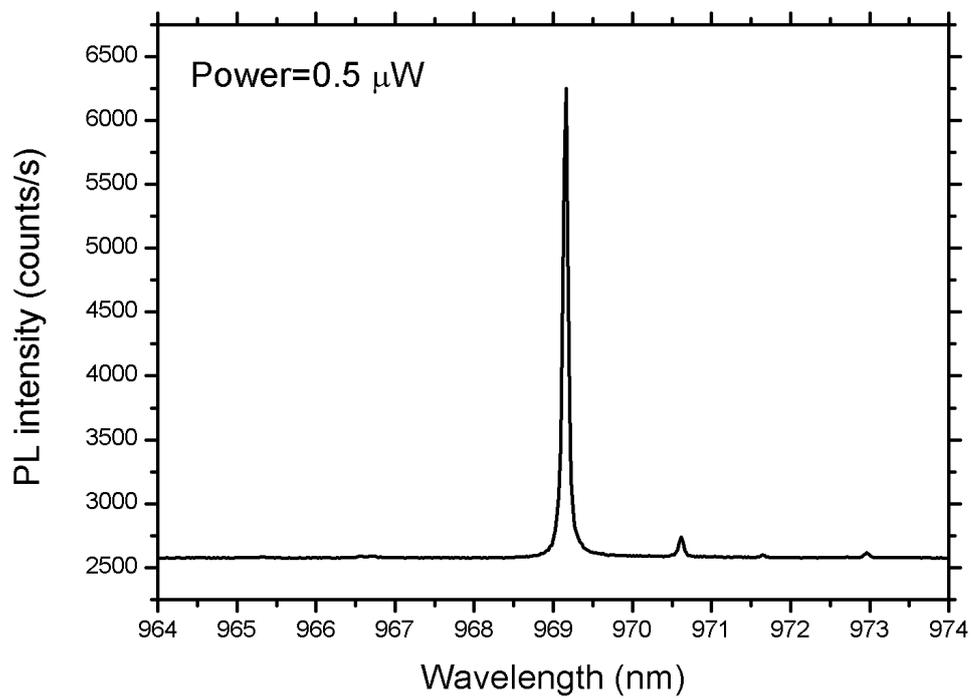


圖 4-32: Pillar B 加上帶通濾鏡之後，注入雷射功率 0.5  $\mu$ W 的 PL 強度與波長關係。



在共振溫度下，量子點與共振腔耦合使 Pillar B 的發光效率為一般量子點 Hole B 的 25 倍，使其量測時間大幅縮小，也是因為共振腔模態雷射的關係，只要到達雷射閾值附近， $g^{(2)}(0)$  就會大幅上升超過 1，不像一般量子點可以操作在注入雷射功率較高的狀況之下也可量測到反群聚現象，作為一個單光子源，量子點跟微柱共振腔雷射各有優缺點，微柱共振腔雖然可以把量子點的光強度放大，相對也會面臨接近閾值的時 LED 熱輻射效應的考驗，量子點發光強度較弱，在高注入雷射功率之下可以量測到反群聚效應的現象。

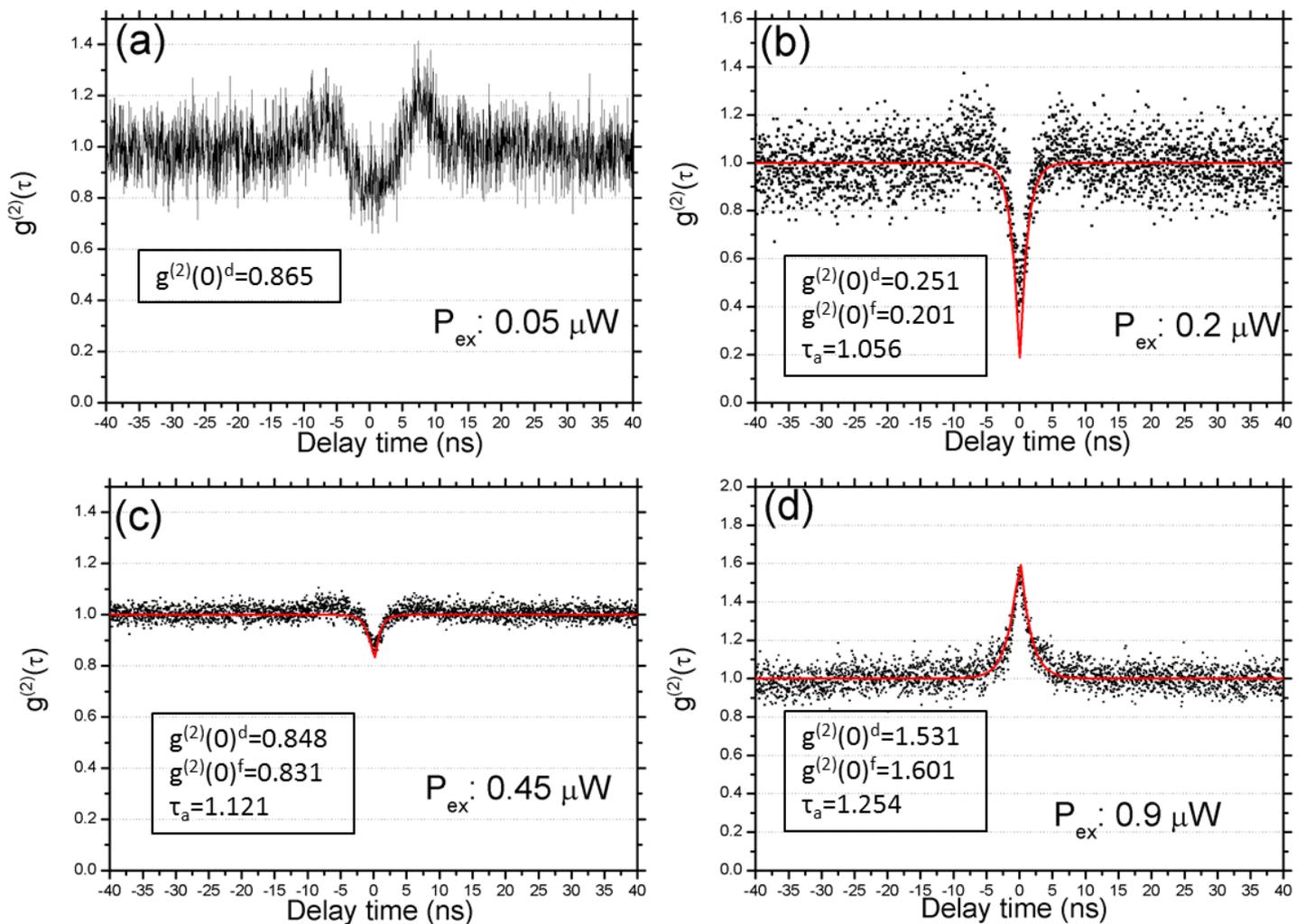


圖 4-33: Pillar B 在共振溫度 23.5 K 下，不同雷射功率下量測到的二次相關性函數圖形。

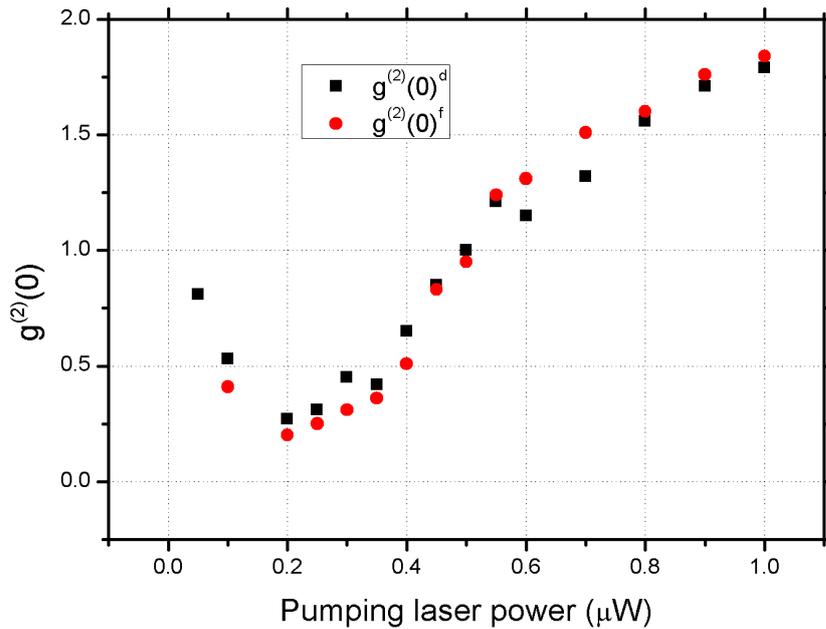
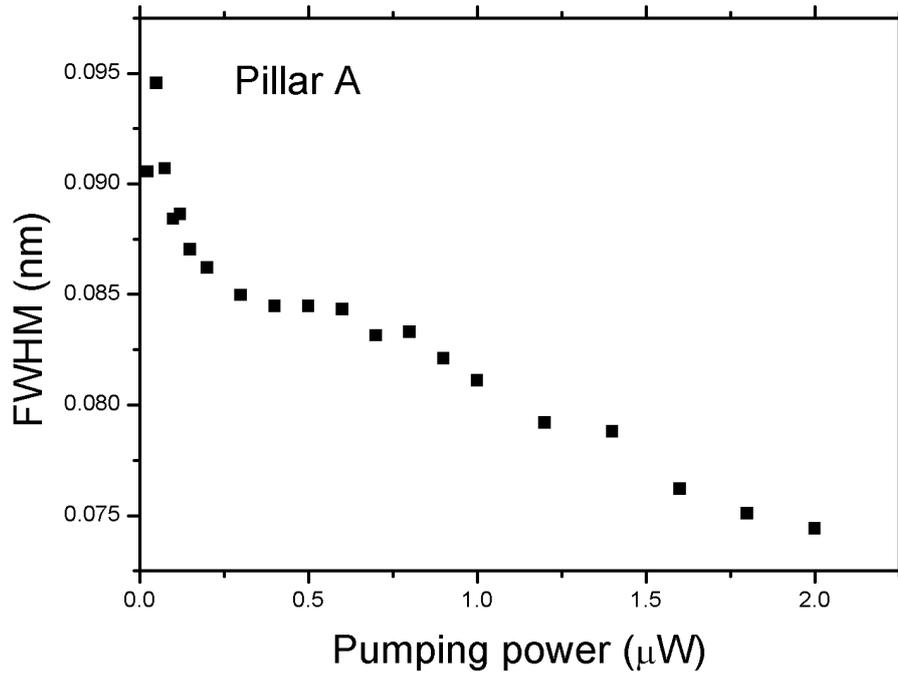


圖 4-34: Pillar B 在共振溫度 23.5 K 下,  $g^{(2)}(0)$  與注入雷射功率的關係圖, 黑色方塊  $g^{(2)}(0)^d$ ; 紅色圓點是數據擬合值  $g^{(2)}(0)^f$ 。

綜合以上所述, 雖然我們無法從強度相依關係判斷單量子點雷射是否達到閾值, 但是我們可以藉由二次相關性函數隨著注入雷射功率的變化來判斷, 若是單量子點雷射, 一開始自發性輻射階段  $g^{(2)}(0)$  會小於 1, 在因為接近閾值而  $g^{(2)}(0)$  會大於 1, 最後慢慢回歸同調性而  $g^{(2)}(0)$  會等於 1, 所以若我們將  $g^{(2)}(0)=1$  這點來判斷雷射已經到達到閾值, 我們就可以比較這兩個 Pillar 之間的差異, 由圖 4-32 和圖 4-34 比較, 發現 Pillar B 較 Pillar A 在較低雷射功率下  $g^{(2)}(0)=1$ , 我們對共振溫度時 Pillar A 和 Pillar B 做半高寬擬合, 如圖 4-35, 圖 4-35(a) 可以觀察出 Pillar A 在雷射功率 0.8  $\mu\text{W}$  時, 半高寬有明顯地下降, 圖 4-35(b) 可以觀察出 Pillar A 在雷射功率 0.6  $\mu\text{W}$  時, 半高寬有明顯地下降, 所以我們推論 Pillar B 較 Pillar A 在較低注入雷射功率達到閾值[22]。

(a)



(b)

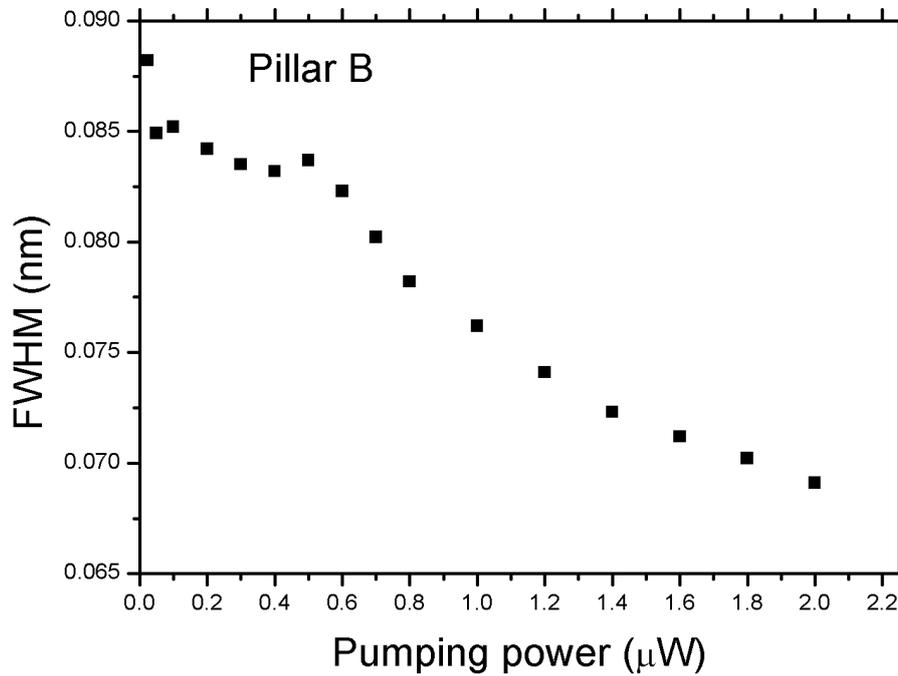


圖 4-35: (a) Pillar A 在不同雷射功率下半高寬變化圖。(b) Pillar B 在不同雷射功率下半高寬變化圖。

圖 4-36 是 Pillar A 與 Pillar B，反群聚時間(群聚時間)與注入雷射功率的關係圖。我們發現在微柱共振腔的二次相關性函數的反群聚時間(在  $g^{(2)}(0) > 1$  時為群聚時間)，會隨著雷射功率有上升的趨勢，推測可能因為共振腔進入相位轉換階段，同調時間緩慢變長的緣故。

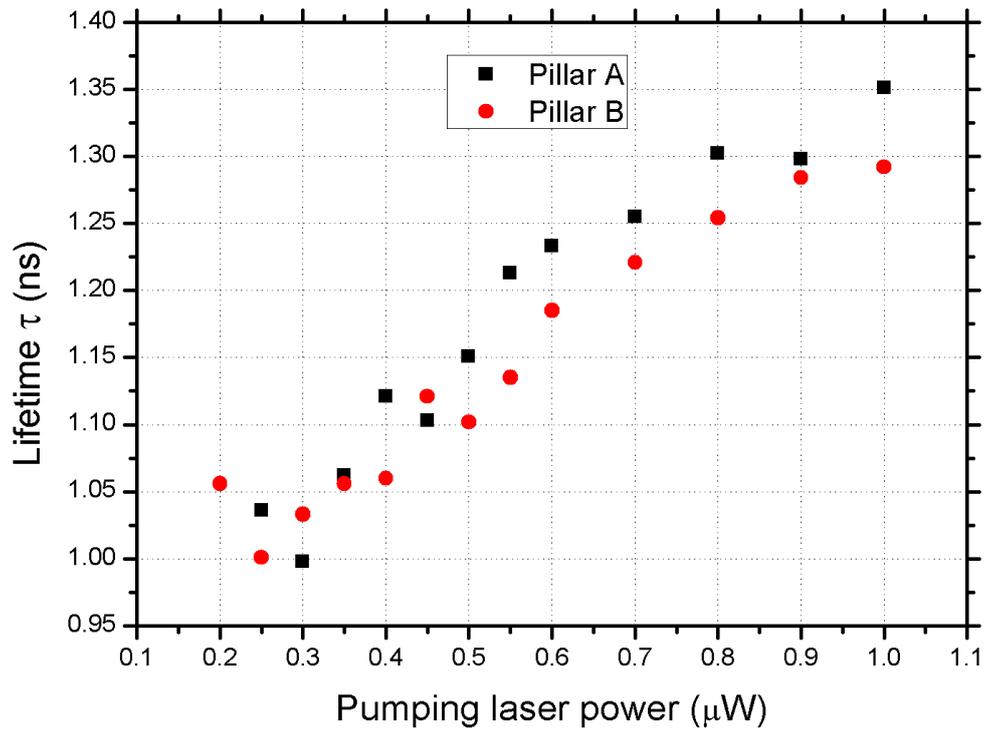


圖 4-36: Pillar A 與 Pillar B，反群聚時間(群聚時間)與注入雷射功率的關係圖。

## 非共振溫度下的二次相關性

在溫度 4 K 之下，針對共振腔模態去做 HBT 量測[7]，樣品中的微柱共振腔中會包含數個量子點，這些量子點提供共振腔光子，還有背景光源或是塊材本身電子電洞複合產生的光子，都是共振腔光源的提供者，圖 4-37 為 Pillar A 在  $1 \mu\text{W}$  共振腔模態半高寬與溫度的關係，當譜線半高寬降低時，表示其產生共振效應，在溫度小於 10 K 和介於 20-26 K 之間，都有產生共振效應，當針對多顆量子點耦合的共振腔模態雷射，一開始圖形就會是平坦的， $g^{(2)}(0)$  的值為 1，表示此時光子分布為帕松分布，隨著注入雷射功率增高，到達雷射的閾值，就跟共振溫度的情況一下， $g^{(2)}(0)$  隨之上升，圖 4-38 為 Pillar A 在溫度 4 K 下，不同雷射功率下量測到的二次相關性函數圖形，圖 4-38(a) 是在雷射功率  $0.3 \mu\text{W}$  下，這時候共振腔的發光強度不高，M 字型為崩潰發光產生圖形，可以分辨其  $g^{(2)}(0)=1$ ，光子分布為帕松分布；圖 4-38(b) 雷射功率  $1 \mu\text{W}$  時，實驗值  $g^{(2)}(0)^d=1.481$ ，擬合值  $g^{(2)}(0)^f=1.562$ ，這時在閾值附近，相位轉移時期，光子群聚效應很強，因為 LED 熱輻射關係造成，圖 4-39 是 Pillar A 在溫度 4 K 下， $g^{(2)}(0)$  與注入雷射功率的關係圖，在注入雷射功率小於  $0.3 \mu\text{W}$  時，崩潰發光較強，圖形成 M 字型，能觀察出  $g^{(2)}(0)$  等於 1，這時如同一般多量子點共振腔雷射一樣，因為多個量子點產生的複數光子，還有背景光源本身光子數目分布為帕松分布，為共振腔提供帕松分布的光子，而注入雷射功率大於  $0.3 \mu\text{W}$  時，由於接近雷射閾值， $g^{(2)}(0)$  開始上升，此時光子偵測器的雙光子相關機率比原本更加提高，光子群聚效應產生，與共振溫度下的微柱共振腔一樣。

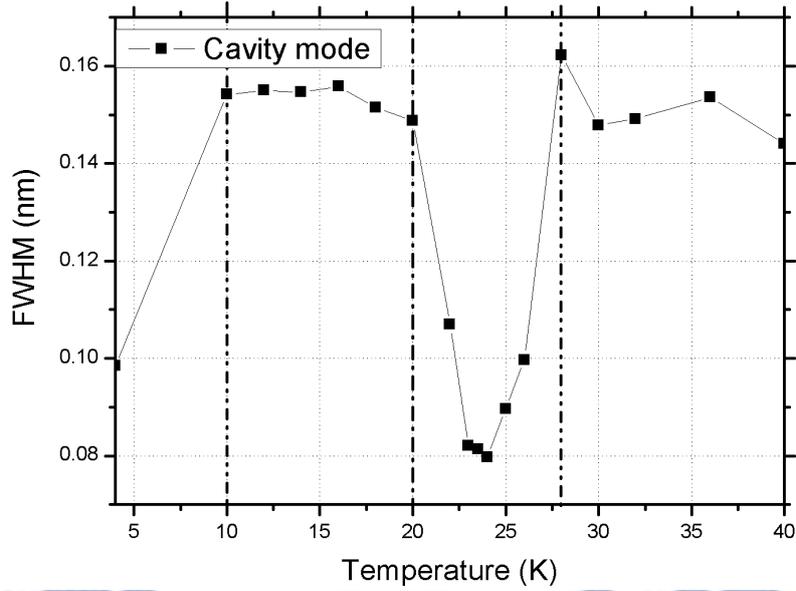


圖 4-37: Pillar A 在  $1 \mu\text{W}$  共振腔模態半高寬與溫度的關係。

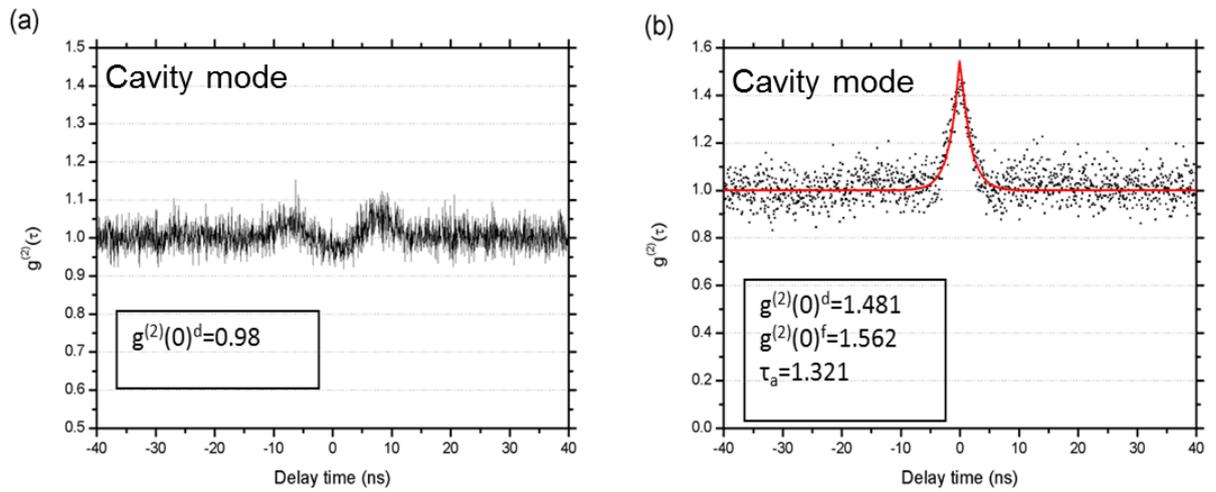


圖 4-38: Pillar A 在溫度 4 K 下，不同雷射功率下量測到的二次相關性函數圖形，一單位時間為 33 ps，積分 500 秒，插入圖為用捲積擬合圖形；(a)在  $\text{power}=0.1 \mu\text{W}$  下，這時候共振腔的發光強度不高，M 字型為崩潰發光產生圖形，可以分辨其  $g^{(2)}(0)=1$ ，光子分布為帕松分布；(b)雷射功率為  $1 \mu\text{W}$  時，實驗值  $g^{(2)}(0)=1.562$ ，擬合值  $g^{(2)}(0)=1.481$ ，這時在閾值附近，相位轉移時期，光子群聚效應十分顯著。

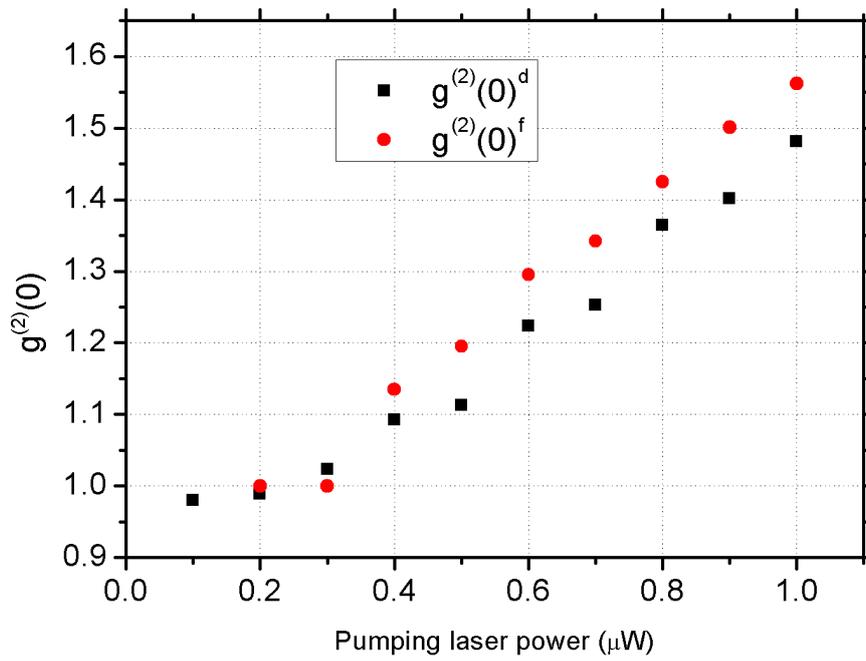


圖 4-39: Pillar B 在溫度 4 K 下， $g^{(2)}(0)$  與注入雷射功率的關係圖，黑色方塊為實驗值；紅色原點是數據分析擬合的結果。



## 第六章 總結

本論文從了解二次相關性函數的基本原理開始，了解 HBT 的實驗理論模型，建立能夠量測二次相關性函數的 HBT 實驗儀器架構，進而用 HBT 實驗量測量子點樣品和微柱共振腔樣品的二次相關性函數，了解其光子的反群聚程度，雖然實驗的設置還有可改善之處，像是 SPAD 崩潰發光的問題，可用小型的單光儀解決，讓實驗的結果能夠更精確，但我們已架設出可量測出兩個光子之間相關機率的實驗，只要在其樣品發光強度到達一定程度之情況，就可以分辨光子源的特性，其光子是否有群聚性，這是本實驗已達成的部分。

我們了解量子點為什麼能成為單光子源，還有從量子共振腔動力學了解共振腔如何與量子點耦合增強發光強度，再從內含量子點的微柱共振腔，做 HBT 實驗量測二次相關性函數圖形，發現單一量子點在低注入雷射功率的狀況下，有最小的  $g^{(2)}(0)$  值，反群聚現象明顯，最接近理想的單光子源，在高注入功率的狀況之下，受到背景雜訊影響， $g^{(2)}(0)$  值上升，但有相對不錯的反群聚性，反群聚時間會隨著注入雷射功率增加而下降，因為激子復合發出光子的速率提升，反群聚時間為其倒數因而下降，因反群聚時間下降進而影響二次相關性函數  $g^{(2)}(0)$ ，使  $g^{(2)}(0)$  上升；而內含量子點的微柱共振腔，在共振溫度時，量子點的譜線與共振腔模態雷射耦合，因為能階並沒有分裂，屬於弱耦合範疇，此時共振腔模態雷射因為 Purcell effect 而增加量子點的自發輻射效率，使發光效率升高，在共振腔模態在接近雷射閾值時，原本的自發輻射相位轉化成同調性雷射之間，有一段 LED 熱輻射狀態，此時光子數目的變化很廣，在延遲時間 0 時兩個光子之間的相關機率非常高，光子群聚現象十分明顯。所以我們可以用雷射的二次相關性函數來判斷雷射是否到達閾值，這對雷射領域並且要了解雷射的閾值是一項非常有用的判斷工具。

我們所架設的 HBT 實驗未來可以對量子點的糾纏態光子（entangle photons）做糾纏態光子相關性研究，在兩台單光子偵測器前面加上不同的極性偏振片組合，在做雙光子相關性機率量測，了解量子點光子的糾纏性程度，在之前，必須解決激子能階的精細結構分裂，使量子點發出光子從可分辨的垂直或水平偏振的光子，簡併成不可分辨的左旋或右旋光子。



## 參考資料

- [1] C. H. Bennett and P. W. Shor (1998). IEEE Transactions on Information Theory **44**(6): 2724.
- [2] G. Nicolas, R. Grégoire, T. Wolfgang, and Z. Hugo (2002). Reviews of Modern Physics **74**(1): 145.
- [3] N. Akopian ; N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B. D. Gerardot and P. M. Petroff (2006). Physical Review Letters **96**(13): 130501.
- [4] Z. Valéry, B. Hans, J. Per, P. Nikolay, J. Sören, T. Tedros, G. Edgard, P. Mats-Erik, S. Lars, and B. Gunnar (2004). New Journal of Physics **6**: 96.
- [5] H. J. Kimble, M. Dagenais and L. Mandel (1977 ). Physical Review Letters **39**: 691.
- [6] W. E. Moerner and D. Fromm (2003 ). Review of Scientific Instruments **74** :3597.
- [7] L. Samuelson and A. Gustafsson (1995). Physical Review Letters **74** :2395
- [8] J. M. Gérard M and B. Gayral B ( 2001). Physica E **0** :131.
- [9] R. Hanbury Brown and R. Q. Twiss (1957). Proceedings of the Royal Society of London A 242 **230**: 300.
- [10] B. Gayral, J. M. Gérard, A. Lemaître, C. Dupuis, L. Manin, and J. L. Pelouard (1999). Applied Physics Letter **75**: 1908.
- [11] C. Reese, C. Becher, A. Imamoglu, E. Hu, B. D. Gerardot, and P. M. Petroff (2001). Applied Physics Letter **78**: 2279.
- [12] P. Matthew, S. Charles, V. Jelena, Z. Bingyang, S. S. Glenn, P. Jocelyn and Y. Yoshihisa (2002). Physical Review Letters **89**: 233602.
- [13] N. Masahiro, K. Naoto, I. Satoshi, O. Yasutomo, and A. Yasuhiko (2009). Optical Express **17**(18): 15975.

- [14] V. B. Verma, Martin J. Stevens, K. L. Silverman, N. L. Dias, A. Garg, J. J. Coleman and R. P. Mirin (2011). *Optical Express* **19**(5): 4182
- [15] S. Reitzenstein and A. Forchel (2009). P. Michler, Springer Berlin Heidelberg: 267.
- [16] L. Andreani, G. Panzarini, J.M. Gérard (1999). *Physical Review B* **60**: 13267.
- [17] N. Mizuochi, T. Makino, H. ato (2012). *Nat Photon* **6**(5): 299.
- [18] F. Bello and D. M. Whittaker (2010). *Physical Review B* **82**(11): 115328.
- [19] P. R. Rice and H. J. Carmichael (1994). *Physical Review A* **50**(5): 4318.
- [20] J. A. Armstrong and A. W. Smith (1965). *Physical Review Letters* **14**(3): 68.
- [21] R. Jin, D. Boggavarapu, M. Sargent, III, P. Meystre, H. M. Gibbs and G. Khitrova (1994). *Physical Review A* **49**(5): 4038.
- [22] S. Strauf and F. Jahnke (2011). *Laser & Photonics Reviews* **5**(5): 607.
- [23] G. Li, T. C. Zhang, Y. Li, and J. M. Wang (2005). *Physical Review A* **71**(2): 023807.
- [24] B. Lounis and M. Orrit (2005). *Reports on Progress in Physics* **68**(5): 1129.
- [25] S. M. Ulrich, C. Gies, S. Ates, J. Wiersig, S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Löffler, A. Forchel, F. Jahnke, and P. Michler (2007). *Physical Review Letters* **98**(4): 043906.
- [26] R. Alléaume, F. Treussart, J. M. Courty and J. F. Roch (2004). *New Journal of Physics* **6**(1): 85.
- [27] E. M. Purcell (1946). *Physical Review* **69**: 681.
- [28] D. J. Mowbray and M. S. Skolnick (2005). *Journal of Physics D: Applied Physics* **38**(13): 2059.