

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以及磁場調變精細結構分裂

Stress and Magnetic Field Tuning of Fine Structure Splitting

in Single InAs Quantum Dots

1896

研究生 : 賴韋辰

指導教授 : 張文豪教授

中華民國一零一年七月

砷化銦單量子點藉應力以及磁場調變精細結構分裂

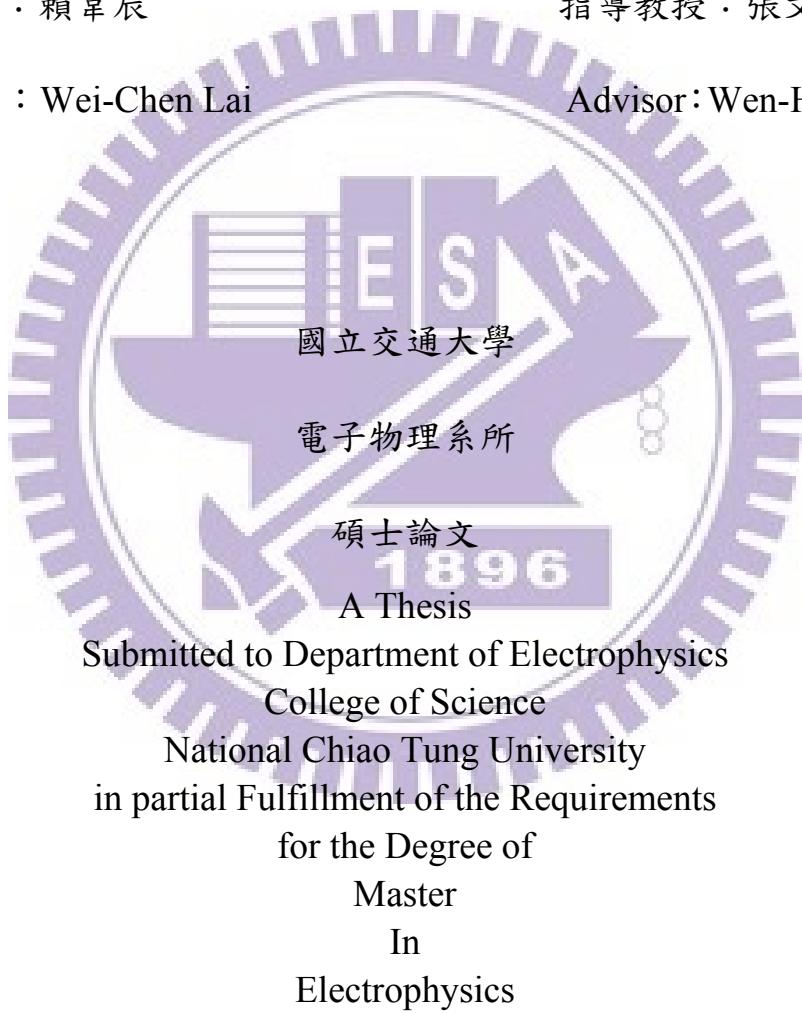
**Stress and Magnetic Field Tuning of Fine Structure Splitting  
in Single InAs Quantum Dots**

研 究 生：賴韋辰

Student : Wei-Chen Lai

指 導 教 授：張文豪 教 授

Advisor: Wen-Hao Chang



July 2012

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

# 砷化銦單量子點藉應力以及磁場調變精細結構分裂

學生:賴韋辰

指導教授: 張文豪 博士

國立交通大學電子物理所

## 摘要

砷化銦單量子點具有精細結構分裂，源於其量子點本身形狀之不對稱。本文透過 Bir-Pikus 漢米爾頓方程式來探討精細結構分裂。外加水平磁場改變激子能態精細結構分裂，從而探討能態可否藉此調控回簡併的原因以及條件。藉由外加應變於量子點的方式同時調變其精細結構分裂以及本徵軸。實驗顯示在外加應力的輔助下，激子精細結構分裂反交叉的程度有被改善。故此說明同時結合外加應力以及水平磁場的方式，是有可能將單量子點的激子能態調併回簡併態。

# Stress and Magnetic Field Tuning of Fine Structure Splitting in Single InAs Quantum Dots

Student: Wei-Chen Lai

Advisor : Prof. Wen-Hao Chang

Department of Electrophysics  
National Chiao Tung University

## ABSTRACT

The fine structure splitting (FSS) of exciton emissions from single InAs/GaAs quantum dots (QDs) are investigated. The excitonic FSS is attributed to the QD shape asymmetry reduction. Through the formulation of the Bir-Pikus Hamiltonian, the relationship between the FSS and strain is discussed. The excitonic FSS can be manipulated by applying in-plane magnetic field. We have discussed the reason that causes anti-crossing of the two bright exciton state. By applying external stress, the FSS and the eigenaxes of QDs can be changed simultaneously. In the experiment, the degree of anti-crossing do improved under external stress assistance. By combining these two methods, the single quantum dot excitonic state can be recovered to degeneracy

# 致謝

轉眼間兩年過去了，時間感覺過得很快，這兩年內充滿了酸甜苦辣。

回憶起第一次來到新竹這個城市，一切的人事物都是那麼的新鮮也是那麼的陌生。瞬間，即將離開這個城市，有懷念也有不捨。可是同時也是迎接接下來新的挑戰。謹記在碩士生涯中所學到的態度以及精神，避免再犯同樣的錯誤，用對自己負責的態度來面對往後的人生。首先，我要很感謝我的父母以及家人，謝謝你們時刻給我鼓勵，關心我的健康，我的生活。你們的鼓勵是支持我支撐下去的動力！。再來，我很感謝我的指導教授張文豪博士，老師，不好意思，讓你花費了那麼多精力指導我，花費了你那麼多研究資源，可成果卻沒你所期望，可是你還是總是給我機會讓我摸索，學習。謝謝你那苦口婆心的指責教導做事情的態度以及精神，我謹記在心。同時，也感謝林聖迪老師提供樣品讓我可以完成論文。也感謝李明知老師教導了我們許多半導體光學的知識以及在口試中給了許多建議。謝謝徐子民老師遠從中央而來口試並給了許多建議。

能順利通過研究所這個關卡，我真的要好好謝謝給我很多幫助以及鼓勵的學長姐們。我要很謝謝家賢學長，謝謝學長教導我許多光路架設技巧以及很多學術及程式上的知識。謝謝你陪我這樣子熬夜衝刺著實驗。謝謝你，實驗不順利時你帶給我得樂觀以及積極的

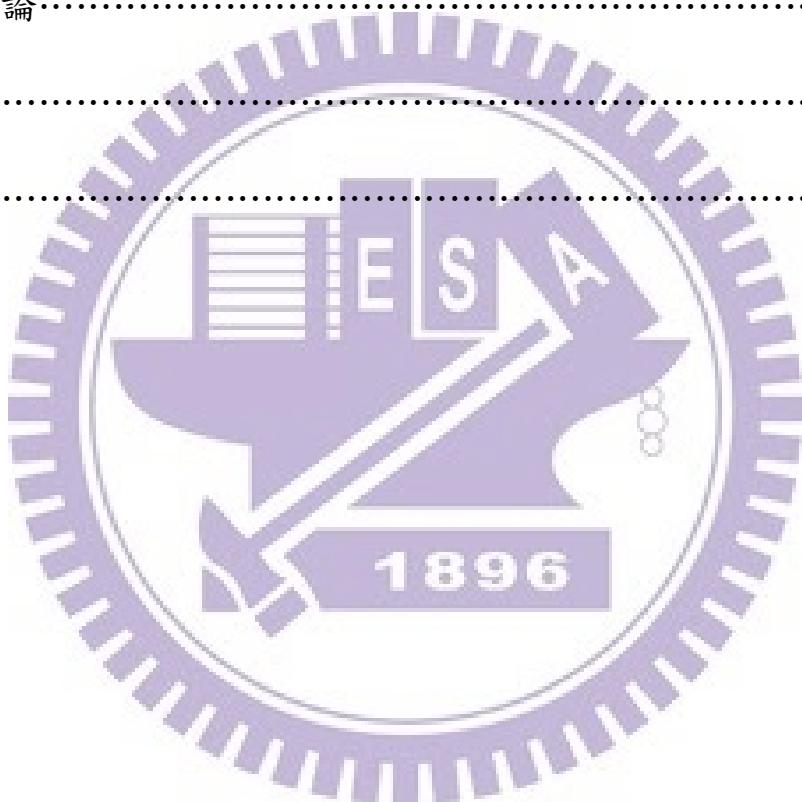
態度。學長，你辛苦了，給你添很多麻煩，真的好對不起也好感謝你。林萱學姐，你就好像我的親生姐姐，時刻關心我的生活，鼓勵我，讓我時常感到很窩心，謝謝你總是不計較我的幼稚以及任性，我打從心底真的把你看作如我很重要的家人一般。文哲學長，學長謝謝你總是充當我們大家的開心果，也時常在我低潮的時候，跟我分享你的故事以及鼓勵我，我很佩服你的組織能力以及領導你，謝謝你帶給我充滿快樂的生活。衍均哥，雖然認識你只有 1 年時間，謝謝你總是陪我做實驗，時常給我很大幫助，很開心與你共同那同甘共苦的歲月，謝謝。同時也謝謝大雄學長在實驗上給的意見及看法。感謝已經畢業的學長們，詠盛、健家、峰菖和國榮，感謝你們教導及帶領我們做實驗。還要感謝一起奮鬥的戰友們，翊瑩、若榕以及詩涵，永遠記得我們在一起相處的那些年，那些只有我一個男生三個美女陪伴我的日子。也要謝謝 WK LAB 的夥伴們。芳瑋，凱爺，特別是我的兄弟永翔。有你這個兄弟，讓我在這兩年很開心，很有回憶。感謝一群可愛的學弟妹們，冠宇、廷晏、承晏、鑫封、俊宏、雅菱，梓瑜，于恬，佩玟。要感謝的人很多，未被提及的人請容我在此一起感謝。

最後也要謝謝孟華在最後的過程中給我的鼓勵，讓我有信心可以堅持到最後。也要感謝瑄毓給我的鼓勵及關心，謝謝你們大家。

# 目錄

中文摘要.....	i
英文摘要.....	ii
致謝.....	iii
目錄.....	v
圖目錄.....	vii
表目錄.....	x
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.....	10
2.4 應變效應以及精細結構分裂之關係.....	13
2.5 塞曼效應.....	18
第三章樣品與實驗裝置.....	21
3.1 樣品結構.....	21
3.2 PMN-PT材料簡介及其工作原理.....	23

3.3 顯微光激螢光量測系統.....	27
第四章光譜分析與討論.....	31
4.1 單量子點顯微光激螢光光譜.....	31
4.2 單量子點偏振螢光光譜.....	33
4.3 單量子點磁場顯微光激螢光光譜.....	38
第五章結論.....	54
附錄.....	55
參考資料.....	56



# 圖 目 錄

【圖 1-1】量子點中電子和電洞輻射複合而發出左旋光( $\sigma^+$ )或右旋光( $\sigma^-$ )。	3
【圖 1-2】理想狀態下的量子點雙激子系統。	3
【圖 2-1】電子電洞交換作用力下之模擬螢光光譜圖	9
【圖 2-2】價電帶混合效應下模擬量子點偏振螢光光譜圖	13
【圖 2-3-a】模擬應變不對稱性對精細結構分裂變化圖	16
【圖 2-3-b】本徵軸及精細結構分裂隨外加偏壓模擬圖	17
【圖 3-1】砷化銦量子點樣品結構圖	21
【圖 3-2】可外加應力之砷化銦量子點元件結構圖	23
【圖 3-3】 $\text{ABO}_3$ 型化合物結構示意圖	24
【圖 3-4】壓電材料內電偶極矩分布示意圖	25
【圖 3-4-1】電偶極矩未極化分布	25
【圖 3-4-2】電偶極矩極化後分布	25
【圖 3-5】壓電材料在不同偏壓時的形變方式示意圖	25
【圖 3-6】顯微光激螢光量測系統實驗裝置	30
【圖 3-7】樣品於水平磁場下之示意圖	30
【圖 4-1】量子點顯微光激螢光光譜圖	32
【圖 4-2】雷射由低到高激發功率下量子點之光激螢光光譜圖	33

【圖 4-3】量子點的水平( $\pi_x$ )和垂直( $\pi_y$ )線偏振光激螢光光譜。	34
【圖 4-4】受形狀不對稱及受應力作用下，量子點之能階圖。	35
【圖 4-5】量子點 $E_x(\pi_x) < E_x(\pi_y)$ 之偏振螢光光譜圖。	36
【圖 4-6】量子點於水平磁場下螢光光譜圖。	38
【圖 4-7】水平磁場下量子點激子及雙激子能量隨偏振角度變化等高線圖。	38
【圖 4-9】(a) 量子點激子能量峰值隨偏振角度變化圖	40
【圖 4-9】(b) 量子點雙激子能量峰值隨偏振角度變化圖	40
【圖 4-9】(c) 量子點水平磁場下 $(E_{xx} - E_x)/2$ 隨偏振角度變化圖	41
【圖 4-10】量子點精細結構分裂以及本徵軸隨磁場變化圖	41
【圖 4-11】 $g_{h3}$ 未考慮下兩明激子能態以及 FSS 隨磁場變化圖	44
【圖 4-12-a】 $g_{h3}$ 考慮下兩明激子能態 $E_+$ & $E_-$ 反交叉現象之圖	45
【圖 4-12-b】 $g_{h3}$ 考慮下外加磁場於 90 度及 75 度精細結構分裂隨磁場變化圖	45
【圖 4-13】模擬外加磁場不同角度下 FSS 及本徵軸隨磁場變化圖	47
【圖 4-14】模擬外加磁場在 90 度，75 度 以及外加應力於 80 度輔助下，精細結構分裂及本徵軸隨磁場變化模擬圖	48
【圖 4-15】實驗時晶軸及外加水平磁場和應力方向表示圖	50

【圖 4-16】 $\varphi_B = 80^\circ$  與  $\varphi_B = 87^\circ$  FSS 及本徵軸隨磁場變化比較圖 50

【圖 4-17-a】外加偏壓下 FSS 隨電壓之變化圖 52

【圖 4-17-b】外加偏壓下本徵軸隨電壓之變化圖 52

【圖 4-18】 $\varphi_B = 87^\circ$  有無應力下 FSS 及本徵軸隨磁場變化比較圖 52

【圖 4-18-a】外加應力及磁場之方向示意圖 52



# 表目錄

【表 3-1】[001]及[011]之 PMNPT 在不同方向下之壓電常數	26
【表 3-2】本文模擬中所使用各物理量之參數表	55



# 第一章 序論

## 1.1 前言

近幾十年來，科技飛快地進步，許多電子產品慢慢跟我們的生活變得密不可分。為了提供更便利的攜帶性，許多元件已逐漸地微型化，直至奈米尺寸。此時，很多物理行為已不再完全遵循古典物理法則，緊接而來的是一個以量子物理主導的世界，即奈米科技。發展至今，奈米科技已經有許多重大的突破並且在許多傳統元件上有所應用，例如發光二極體[1] [2] 、雷射[3]- [5]、光偵測器[6] [7]、以及電晶體[8]。接下來，發展操控單一原子、單一光子或單一電子已成為量子科技中人們熱烈研究討論的重要議題。

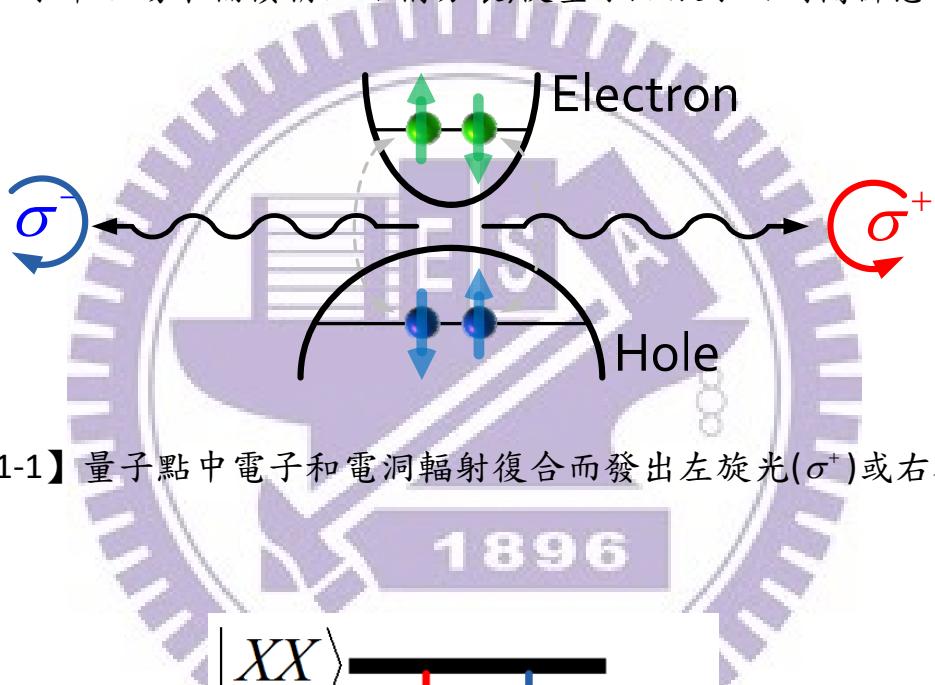
量子科技應用當中，最令人矚目的即量子信息的應用，當中包含量子通訊和量子計算方面等。例如應用在量子密碼術(Quantum cryptography)的單光子光源(Single photon source) [9]。目前可利用半導體量子點來產生高效率的單光子輻射同時操作波段亦來到光纖通訊( $1.3\mu\text{m}$ )對量子密碼術在通訊方面有很大貢獻。在量子計算方面，傳統數位化資訊處理即將資訊轉為二進位的方式呈現，故二進位中的0和1為資訊處理的最小單位。在量子資訊中，最小處理單位稱之量子位元(Quantum bit;Qubit)，以量子態 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle$ 來呈現。量子態具疊加性和糾纏態等特性，故提升了運算速度及資訊存儲空間。

## 1.2 研究動機

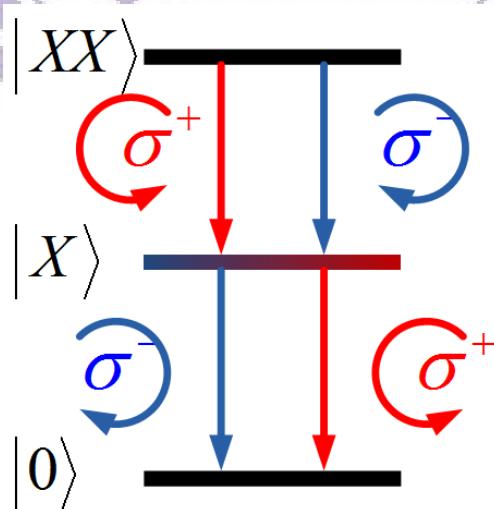
在量子物理系統中，量子同調性容易受到干擾而被破壞。為了實現能在量子計算過程中，保持著量子特性的系統，我們使用了量子點系統。量子點是三個方向皆被侷限的零微系統，電子在量子點內會受到量子侷限(Quantum confinement)效應的影響，使電子能量分布呈現不連續性，像是在原子中一般；因此量子點又稱為人造原子。

當量子點中同時存在電子和電洞時，兩者會因庫侖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 的光子藕合，而發出左旋光或右旋光。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，這 2 種不可分辨且在量子力學中以不可因式分解疊加態表示的關係將表示先後放出的螢光互為糾纏態(Entanglement)。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。且在兩種偏振時，其激子能量並非簡併態，存在著一精細結構分裂(Fine structure splitting，FSS)。在許多的文獻中指出，為了消除該精細結構分裂，可透過外加水平及垂直電場、外加應變和外加水平磁場等方法來彌補該分裂。在接下來的

實驗中，我們採用外加水平磁場的方法，嘗試去修補該精細結構分裂 [10]，卻發現激子在接近變回簡併態時，精細結構分裂有一個反交叉現象（Anti-crossing）[11][12]。意即無法將精細結構分裂消除。因此本研究將探討精細結構分裂原因以及造成交叉(Crossing)和反交叉的條件和原因，透過外加應力來改善甚至進一步避免反交叉現象，同時經外加水平磁場來補償精細結構分裂，使量子點激子回到簡併態。



【圖 1-1】量子點中電子和電洞輻射複合而發出左旋光( $\sigma^+$ )或右旋光( $\sigma^-$ )。



【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 光激螢光的偏振性

量子點中的激子，是由傳導帶(Conduction Band)的電子與價電帶(Valance Band)的電洞所構成。而當這組電子電洞對進行複合輻射，即會放出一顆光子，此光子即為激子訊號。激子內電子和電洞各有各自的自旋態，且電子和電洞之間的相互作用，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，且在 z 方向的投影為  $|s_e = \pm \frac{1}{2}\rangle$ 。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，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(Heavy Hole)， $m_h = \pm \frac{1}{2}$  是代表輕電洞(Light Hole)，分別是[13]

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

在此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  $\left(\pm \frac{1}{2}; \pm \frac{1}{2}\right)$ 。而激子中複合放光的機率，可經由費米黃金定律(Fermi's golden rule)得知為

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

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末狀態； $\bar{p}$  為動量算符 (Momentum operator)；在激子輻射複合的過程中，其初狀態和末狀態分別為

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

$\chi_e(r)$ 、 $\chi_h(r)$  分別為電子能態和電洞能態的波包函數(Envelop function)。因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 [14]。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複合放光的機率為

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

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，因此其光激螢光為圓偏振光。

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

在無外加磁場情況下，量子點中的電子和電洞會因為電子-電洞交換作用而耦合。在不同自旋態時，電子與電洞分佈的範圍皆不同，其之間的距離也不同。因而電子與電洞間的距離就產生了庫倫位能，進而影響了激子的能量。

根據文獻[15]-[17]，該部分可以分為兩部分討論，短程(Short range)作用和長程(Long range)作用。短程作用發生在電子與電洞存在於單一晶胞(Unit cell)時。長程作用則是電子和電洞不在同一個單位晶胞時，其交換作用可視為兩個偶極間的庫倫作用。

首先考慮短程作用，其作用來自電子自旋和電洞自旋間的相互作用力，其漢米爾頓(Hamiltonian)方程式可表示為

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

其中  $\delta_{SR}$  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)  $\sigma_x$ 、 $\sigma_y$  和  $\sigma_z$ ，滿足  $S_{e,i} = \frac{\sigma_i}{2}$ ，包立

矩表示如下

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

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

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

由上面三式可知，短程電子-電洞交換作用的漢米爾頓方程式為

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

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

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

若只先考慮重電洞部分，可將上式簡化為

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

其中  $\delta_0 = I_{hh} \delta_{SR}$ 。由式子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  $|M\rangle = |\pm 2\rangle$  的暗激子能階分開  $\delta_0$ 。而長程電子-電洞交換作用的漢米爾頓方程式

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

此時，重電洞明激子中原本簡併在一起的  $|\pm 1\rangle$  能態會因為長程交換作用而混合，受到短程和長程作用的綜合影響為

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

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  $\theta_d$  代表量子點的伸長(Elongation)方向。其本徵值  $E_{\pm}$  和本徵能態  $|\Phi_{\pm}\rangle$  為

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

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

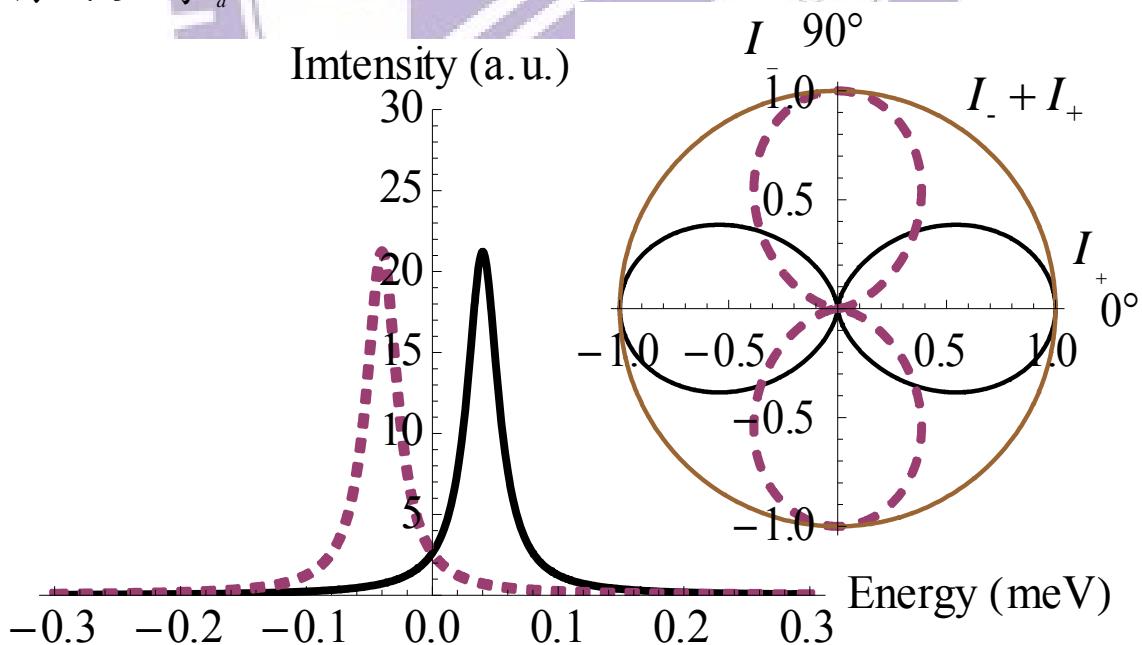
激子複合發光躍遷率的計算，得到的螢光強度  $I_{\pm}$  為

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

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

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

由上面三式，可模擬量子點中激子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  $\Delta_1 = 0.08\text{meV}$ ，螢光強度都相同且為相互正交的線偏振，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】電子電洞交換作用力下之模擬螢光光譜圖

## 2.3 價電帶混合效應(Valence-band mixing)

由於量子點受應力的影響，會造成價電帶混合效應[18]，同時也會影響激子能階和螢光偏振。因此我們將利用 Luttinger-Kohn 以及 Bir-Pikus 的漢米爾頓方程式來觀察重電洞態和輕電洞態混合後的互相影響，其對激子螢光的變化。

在 Luttinger-Kohn 以及 Bir-Pikus 的漢米爾頓方程式[13]中，

Luttinger-Kohn 是計算關於動量項的，Bir-Pikus 是計算關於應變項的。

若電洞本徵函數以  $\left| +\frac{3}{2} \right\rangle$ 、 $\left| -\frac{3}{2} \right\rangle$ 、 $\left| +\frac{1}{2} \right\rangle$  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

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

1896

其中，

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

上式中， $\gamma_1$ 、 $\gamma_2$  和  $\gamma_3$  為 Luttinger 參數， $k_x$ 、 $k_y$  和  $k_z$  為電子波向量， $\varepsilon_{xx}$ 、 $\varepsilon_{yy}$  和  $\varepsilon_{zz}$  為量子點受的應變量。 $P_k$ 、 $Q_k$ 、 $R_k$  和  $S_k$  項和動能有關， $P_\varepsilon$ 、 $Q_\varepsilon$ 、 $R_\varepsilon$  和  $S_\varepsilon$  項和應變量有關。因載子大多在能帶中心(Zone center)  $\bar{k}=0$ ，在此只考慮關於 Bir-Pikus 項。由於  $S$  值會小於  $R$  值，因此可先忽略不計。上式可簡化為

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

若設  $P+Q=0$ 、 $P-Q=\Delta_{lh}$  和  $R_\varepsilon=\rho e^{-2i\theta_s}$ ，則可將上式寫為

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

$\Delta_{lh}$  為重電洞和輕電洞的能階差，而相位因子  $\theta_s$  代表受應力的方向， $\rho$

為應變耦合強度。解出上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(Heavy-hole like states)。

而類重電洞本徵能態為

$$\left| \psi_h^\pm \right\rangle = \chi_{hh} \left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle - \frac{2\rho e^{\pm 2i\theta_s}}{\Delta_{lh} + \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}} \chi_{lh} \left| \mp \frac{1}{2} \right\rangle \quad (2.21)$$

由上式可知，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  $\frac{-\Delta_{lh} + \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}{2} \approx 0$ ，

而類輕電洞能量  $\frac{-\Delta_{lh} - \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}{2} \approx -\Delta_{lh}$ ，而類重電洞本徵能態可簡化

為

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

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

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

解出上式的本徵值，即為激子的能態的能量，利用本徵函數可得到激

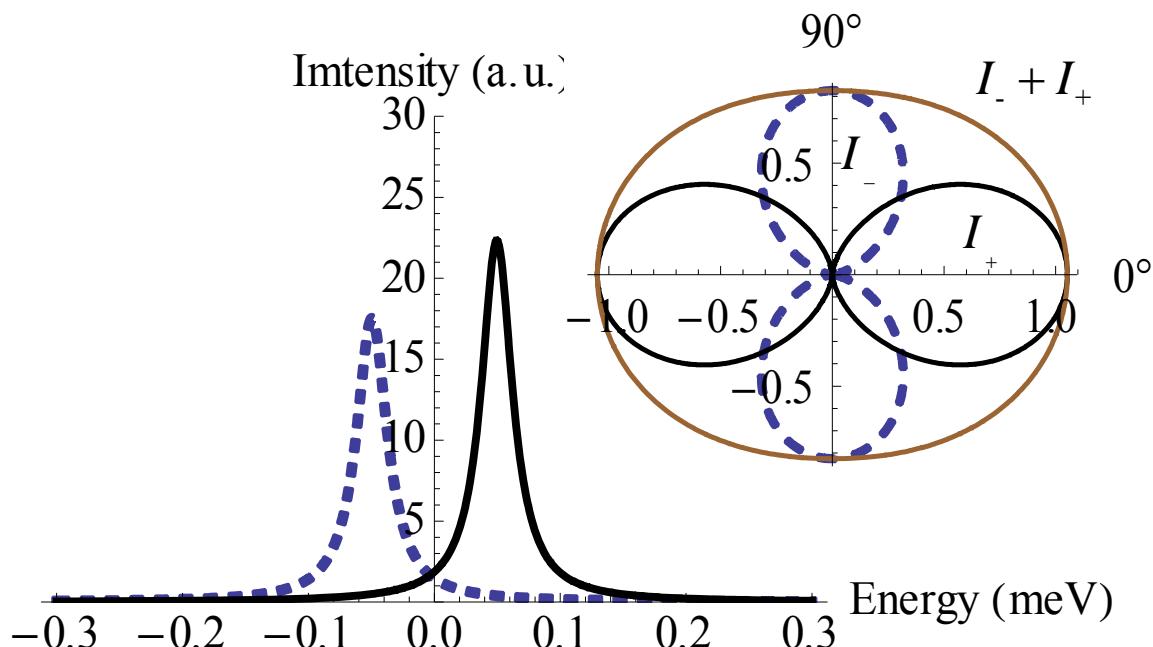
子複合發光的躍遷率，進而求得螢光強度。如 2.2 小節中，假設  $\Delta_0 = 0$ 、

$$\delta_0 = 0.1 \text{ meV} \quad \Delta_1 = 0.08 \text{ meV} \quad \Delta'_1 = \frac{\Delta_1}{3} \quad \Delta_{lh} = 80 \text{ meV} \quad \rho = 22.5 \text{ meV} \quad \frac{I_{lh}}{I_{hh}} = 0.4$$

且令量子點伸長方向和受應力方向是沿著  $0^\circ$ ，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帶混合效應存在，將造成

激子螢光在不同極化方向時，螢光強度的強弱不一。



【圖 2-2】價電帶混合效應下模擬量子點偏振螢光光譜圖

## 2.4 應變效應以及精細結構分裂的關係

如前幾節所敘述，我們可以經由考慮了激子各種效應而得到的漢米爾頓方程式計算出重電洞與輕電洞的能階關係。在沒有外加磁場的作用下，只有類電洞明激子會發出螢光，且其擁有兩個本徵能態，這兩個本徵能態各自有不同的偏振方向，而這兩個本徵能量有一個能量差約為  $10\text{~}100 \mu\text{eV}$ ，這個能量差即為激子的精細結構分裂。

在弱價電帶混合效應的近似下，可利用一階微擾的理論，將輕電洞的影響當作一個微擾影響，把(2.23)的漢米爾頓做一個簡化。

$$H'_{mn} = H_{mn} + \sum_{\alpha \in lh} \frac{H_{m\alpha} H_{\alpha n}}{E_{hh} - H_{\alpha\alpha}} \quad (2.24)$$

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

$$H_{ex} \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0 + \Delta_0 & \tilde{\Delta}_1 + 4\delta_0\tilde{\gamma} \\ \tilde{\Delta}_1^* + 4\delta_0\tilde{\gamma}^* & \delta_0 + \Delta_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |\downarrow; \psi_h^+\rangle \\ |\uparrow; \psi_h^-\rangle \end{pmatrix} \quad (2.25)$$

其中  $\tilde{\gamma} \equiv \frac{\rho e^{-2i\theta_s}}{\sqrt{3}\Delta_{lh}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} = \gamma e^{-2i\theta_s}$ ，解出上式矩陣的本徵值，即為類重電洞明激

子的能量。若令量子點伸長方向和受應力方向皆是沿著  $0^\circ$ ，即  $\theta_s = 0^\circ$

和  $\theta_d = 0^\circ$ ，則激子的能量為

$$E_{\pm} = \frac{(\delta_0 + \Delta_0) \pm \Delta_1}{2} \pm 2\delta_0\gamma \quad (2.26)$$

而本徵能態經由費米黃金定律計算其激子複合發光躍遷率可以得到

其螢光強度  $I_{\pm}$  為

$$\begin{aligned} I_+(\phi) &= P_0^2 (1 + \gamma)^2 \\ I_-(\phi) &= P_0^2 (1 - \gamma)^2 \end{aligned} \quad (2.27)$$

此兩個方向的偏振螢光強度有所差異，我們稱偏振不對稱性

(Polarization anisotropy)，定義為

$$P_L = \left| \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} \right| = \frac{2\gamma}{1 + \gamma^2} \quad (2.28)$$

而兩個本徵能量的能量差即為激子的精細結構分裂，定義為

$$\Delta_{FSS} = E_+ - E_- = \Delta_1 + 4\delta_0\gamma = \Delta_1 + \frac{4\delta_0\rho}{\sqrt{3}\Delta_{lh}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} \quad (2.29)$$

其中  $\delta_0$  為明激子與暗激子的能量差； $\Delta_1$  為兩明激子之間的能量差； $\Delta_{lh}$  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； $\rho$  是代表了價電帶混和效應的程度。

從上式可以知道  $\rho$  項和激子精細結構分裂成正比。又因為多數載子都在能帶中心  $\bar{k}=0$ ，所以只考慮 Bir-Pikus 的漢米爾頓方程式，設

$R = \rho e^{-2i\theta_s}$ ，又令  $\theta_s = 0^\circ$ ，可得到  $\rho$  項為  $\rho = R_\varepsilon + R_k$

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

當中  $R_k = \left(\frac{\hbar^2}{2m_0}\right)\sqrt{3}\left[-\gamma_2(k_x^2 - k_y^2) + 2i\gamma_3k_xk_y\right]$   $R_k$  可忽略不計。

在只關注  $R_\varepsilon$  的情況下， $\varepsilon_{xx}$  和  $\varepsilon_{yy}$  分別是對 x 和 y 方向的應變量； $\varepsilon_{xy}$  是在 xy 平面上的剪應變量(shear strain)； $b$  和  $d$  是材料的形變位能(deformation potential)。若忽略掉剪應變量，則  $\rho$  項為

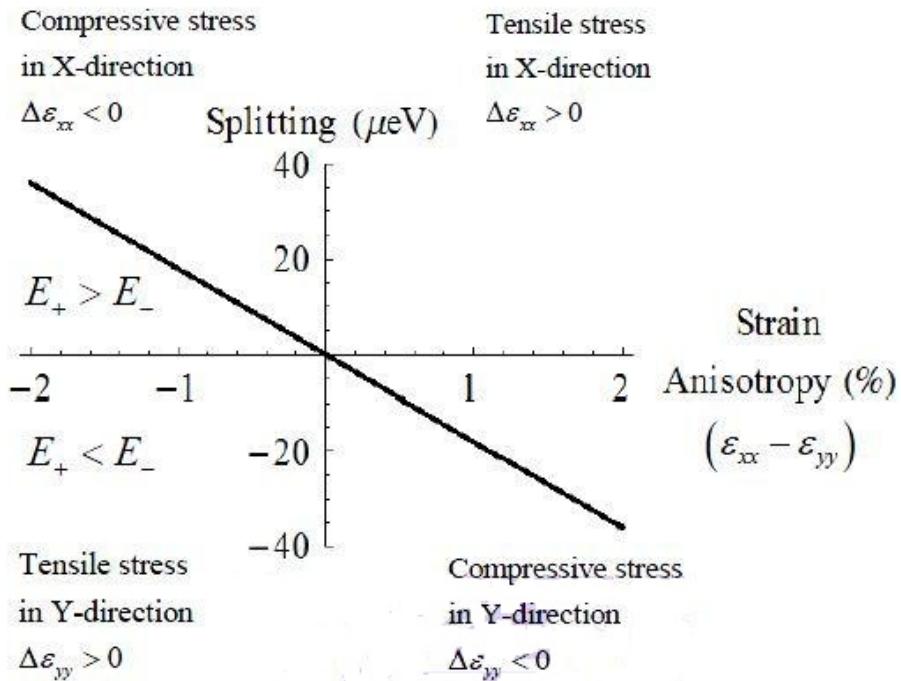
$$\rho = \frac{\sqrt{3}b}{2}(\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}) \quad (2.30)$$

此時，激子的精細結構分裂為

$$\Delta_{FSS} = E_+ - E_- = \Delta_1 + \frac{2\delta_0 b}{\Delta_{lh}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}) \quad (2.31)$$

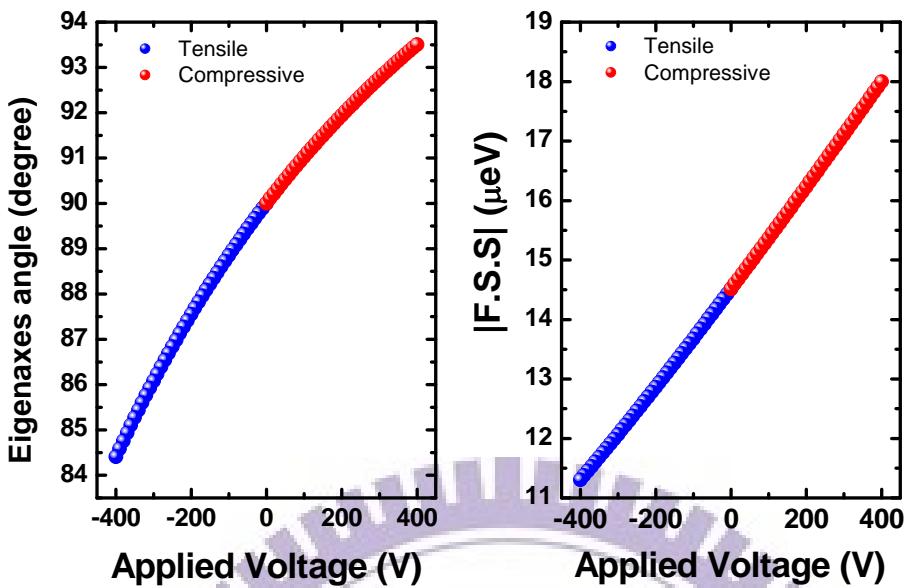
$(\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy})$  為量子點在 x 和 y 方向應變量的差值，定義為應變不對稱性(Strain anisotropy)。此不對稱性對精細結構分裂的量有很大的影響。

若我們可以對量子點的 x 和 y 方向外加應力，即可以改變量子點的應變不對稱性。令  $\Delta_0 = 0$ 、 $\delta_0 = 0.17\text{meV}$ 、 $\Delta_1 = 0.055\text{meV}$ 、 $\Delta_{lh} = 40\text{meV}$ 、 $\frac{I_{lh}}{I_{hh}} = 0.33$ 、 $b = -1.8\text{eV}$ 。



【圖 2-3-a】模擬應變不對稱性對精細結構分裂變化圖。

由之前的模擬可知  $E_+$  和  $E_-$  的偏振方向分別對應到  $x$  和  $y$  方向。【圖 2-3-a】為模擬應變不對稱性與精細結構分裂  $\Delta_{FSS}$  的關係。從模擬可知在  $x$  方向有壓縮應力(compress stress)以及  $y$  方向有伸張應力(tensile stress)時候， $\Delta_{FSS}$  往正值方向變大。反之， $x$  方向有伸張應力以及  $y$  方向有壓縮應力時， $\Delta_{FSS}$  往負值方向變大。於是若激子精細結構分裂的初始狀態為  $x$  方向能量大於  $y$  方向能量,即  $E_+ > E_-$ ，則我們將要在  $x$  方向施加外加應力  $y$  方向施加壓縮應力。反之，若  $E_+ < E_-$  則我們將要在  $x$  方向施加壓縮應力  $y$  方向施加伸張應力。意即激子能量在哪個方向低就在該方向施加壓縮應力。



【圖 2-3-b】本徵軸及精細結構分裂隨外加偏壓模擬圖。

同時，我們設定量子點伸長以及感受應變較大方向皆為  $y$  方向(90 度)，即  $E_+ < E_-$ ，施加應力方向為 75 度。模擬施加正偏壓(壓縮應力)負偏壓(伸張應力)對精細結構分裂絕對值以及其本徵軸(Eigenaxes)的變化

【圖 2-3-b】。當量子點感受到一伸張應變後，其本徵軸將往低角度旋轉，反之，感受到一壓縮應變後，則往高角度旋轉。而且在精細結構分裂方面，由於激子精細結構分裂的初始狀態為  $y$  方向能量大於  $x$  方向(0 度)能量。在外加伸張應力於靠近  $y$  方向，故精細結構分裂絕對值則變小。相反地，若外加壓縮應變， $y$  方向的能量變更大，則精細結構分裂絕對值變大。

## 2.5 賽曼效應 (Zeeman effect)

量子點透過電子以及電洞自旋，會與外加磁場產生交互作用。

若外加磁場  $\vec{B}$  為任意大小以及任意方向，則在直角座標系中

$\vec{B} = B_x \hat{x} + B_y \hat{y} + B_z \hat{z}$ ，其漢米爾頓可寫為[15][16][17]

$$H_B = \mu_B g_e \hat{S}_e \cdot \vec{B} + 2\mu_B (\kappa \vec{J}_h \cdot \vec{B} + q \vec{J}_h^3 \cdot \vec{B}) \quad (2.31)$$

其中  $\mu_B$  為波耳磁元(Bohr magneton)， $\kappa$  和  $q$  為 Luttinger 參數， $g_e$  為電子的 g 因子(g-factor)。上式漢米爾頓可看做磁場透過賽曼效應分別作用在電子以及電洞。而作用在電子的形式為

$$H_B^e = \mu_B g_e \hat{S}_e \cdot \vec{B} \quad (2.32)$$

外加平行於樣品的水平(Transverse)磁場時， $\vec{B} = B \cos \varphi \hat{x} + B \sin \varphi \hat{y}$ ，上式可以寫為

$$H_{B,xy}^e = \frac{1}{2} \mu_B g_e B \begin{pmatrix} 0 & e^{-i\varphi} \\ e^{+i\varphi} & 0 \end{pmatrix} \quad (2.33)$$

此時，系統為沃伊特配置(Voigt Configuration)，在此系統下，磁場將會透過賽曼效應使電子能態  $|+\frac{1}{2}\rangle$  和  $|-\frac{1}{2}\rangle$  耦合，其本徵態變為

$$|\psi^\pm\rangle = \frac{|+\frac{1}{2}\rangle \pm e^{+i\varphi} |-\frac{1}{2}\rangle}{\sqrt{2}} \quad (2.34)$$

本徵能量  $E_\pm$  不變，為  $\frac{1}{2} \mu_B g_e B$ 。

另一方面，磁場作用在電洞的形式為[15][16][17]

$$H_{B,xy}^h = 2\mu_B (\kappa \vec{J}_h \cdot \vec{B} + q \vec{J}_h^3 \cdot \vec{B}) \quad (2.35)$$

其中  $\overrightarrow{J_h^3} = J_{h,x}^3 \hat{x} + J_{h,y}^3 \hat{y} + J_{h,z}^3 \hat{z}$ ，而  $J_{h,x}^3$ 、 $J_{h,y}^3$ 、 $J_{h,z}^3$  分別為

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

(2.36)

故在水平磁場中，上式可寫為

$$H_{B,xy}^h = \frac{1}{2} \mu_B B \begin{pmatrix} 0 & g_{h1} e^{-i\varphi} & 0 & g_{h3} e^{+i\varphi} \\ g_{h1} e^{+i\varphi} & 0 & g_{h2} e^{-i\varphi} & 0 \\ 0 & g_{h2} e^{+i\varphi} & 0 & g_{h1} e^{-i\varphi} \\ g_{h3} e^{-i\varphi} & 0 & g_{h1} e^{+i\varphi} & 0 \end{pmatrix} \begin{array}{l} \left| +\frac{3}{2} \right\rangle \\ \left| +\frac{1}{2} \right\rangle \\ \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \\ \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \end{array} \quad (2.37)$$

其中  $g_{h1} = \sqrt{3}(2\kappa + \frac{7}{2}q)$ 、 $g_{h2} = 4\kappa + 10q$ 、 $g_{h3} = 3q$ 。

若以重電洞激子能態為基底，則其漢米爾頓為

$$H_B^X(\varphi) = \frac{1}{2} \mu_B B \begin{pmatrix} 0 & 0 & g_e e^{+i\varphi} & g_{h3} e^{+i\varphi} \\ 0 & 0 & g_{h3} e^{-i\varphi} & g_e e^{-i\varphi} \\ g_e e^{-i\varphi} & g_{h3} e^{+i\varphi} & 0 & 0 \\ g_{h3} e^{-i\varphi} & g_e e^{+i\varphi} & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{array}{l} \left( -\frac{1}{2}, +\frac{3}{2} \right) \\ \left( +\frac{1}{2}, +\frac{3}{2} \right) \\ \left( +\frac{1}{2}, +\frac{3}{2} \right) \\ \left( -\frac{1}{2}, -\frac{3}{2} \right) \end{array} \quad (2.38)$$

最後在考慮量子點同時受到電子-電洞的交換作用、價電帶的混合效

應以及外加水平磁場賽曼效應的影響。結合  $H_{B,xy}^h$  以及  $H_{BP}$ ，以  $\left| +\frac{3}{2} \right\rangle$ 、

$\left| -\frac{3}{2} \right\rangle$ 、 $\left| +\frac{1}{2} \right\rangle$  和  $\left| -\frac{1}{2} \right\rangle$  為基底，可得電洞的漢米爾頓為

$$H_h = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{1}{2} \mu_B B g_{h3} e^{+i\varphi} & -\frac{1}{2} \mu_B B g_{h1} e^{-i\varphi} & \rho e^{-2i\theta_s} \\ -\frac{1}{2} \mu_B B g_{h3} e^{-i\varphi} & 0 & \rho e^{+2i\theta_s} & -\frac{1}{2} \mu_B B g_{h1} e^{+i\varphi} \\ -\frac{1}{2} \mu_B B g_{h1} e^{+i\varphi} & \rho e^{-2i\theta_s} & \Delta_{lh} & -\frac{1}{2} \mu_B B g_{h2} e^{-i\varphi} \\ \rho e^{+2i\theta_s} & -\frac{1}{2} \mu_B B g_{h1} e^{-i\varphi} & -\frac{1}{2} \mu_B B g_{h2} e^{+i\varphi} & \Delta_{lh} \end{pmatrix} \begin{array}{l} \left| +\frac{3}{2} \right\rangle \\ \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \\ \left| +\frac{1}{2} \right\rangle \\ \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \end{array} \quad (2.39)$$

在弱價電帶混合近似下，可將上式的  $4 \times 4 H_h$  矩陣簡化成  $2 \times 2 H_h'$  矩陣。

同時電子也受到賽曼效應的影響，電洞受到賽曼效應以及價電帶效應。

故激子的漢米爾頓方程式可以寫為

$$H_h \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \tilde{\Delta}_l + 4\delta_0 \tilde{\gamma} & \mu_B B g_e e^{+i\varphi} & \mu_B B (-g_{h3} e^{+i\varphi} + 2\sqrt{3} g_{h1} \tilde{\gamma} e^{-i\varphi}) & \left| \downarrow; \psi_h^+ \right\rangle \\ \tilde{\Delta}_l^* + 4\delta_0 \tilde{\gamma}^* & 0 & \mu_B B (-g_{h3} e^{-i\varphi} + 2\sqrt{3} g_{h1} \tilde{\gamma}^* e^{+i\varphi}) & \mu_B B g_e e^{-i\varphi} & \left| \uparrow; \psi_h^- \right\rangle \\ \mu_B B g_e e^{-i\varphi} & \mu_B B (-g_{h3} e^{+i\varphi} + 2\sqrt{3} g_{h1} \tilde{\gamma} e^{-i\varphi}) & -2(\delta_0 + \Delta_0) & 0 & \left| \uparrow; \psi_h^+ \right\rangle \\ \mu_B B (-g_{h3} e^{-i\varphi} + 2\sqrt{3} g_{h1} \tilde{\gamma}^* e^{+i\varphi}) & \mu_B B g_e e^{+i\varphi} & 0 & -2(\delta_0 + \Delta_0) & \left| \downarrow; \psi_h^- \right\rangle \end{pmatrix} \quad (2.40)$$

若我們可以在量子點上面外加應力，則上式可被修正為

$$H_h \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \tilde{\Delta}_l + 4\delta_0 (\tilde{\gamma} + \tilde{\gamma}_p) & \mu_B B g_e e^{+i\varphi} & \mu_B B [-g_{h3} e^{+i\varphi} + 2\sqrt{3} g_{h1} (\tilde{\gamma} + \tilde{\gamma}_p) e^{-i\varphi}] & \left| \downarrow; \psi_h^+ \right\rangle \\ \tilde{\Delta}_l^* + 4\delta_0 (\tilde{\gamma}^* + \tilde{\gamma}_p^*) & 0 & \mu_B B [-g_{h3} e^{-i\varphi} + 2\sqrt{3} g_{h1} (\tilde{\gamma}^* + \tilde{\gamma}_p^*) e^{+i\varphi}] & \mu_B B g_e e^{-i\varphi} & \left| \uparrow; \psi_h^- \right\rangle \\ \mu_B B g_e e^{-i\varphi} & \mu_B B [-g_{h3} e^{+i\varphi} + 2\sqrt{3} g_{h1} (\tilde{\gamma} + \tilde{\gamma}_p) e^{-i\varphi}] & -2(\delta_0 + \Delta_0) & 0 & \left| \uparrow; \psi_h^+ \right\rangle \\ \mu_B B [-g_{h3} e^{-i\varphi} + 2\sqrt{3} g_{h1} (\tilde{\gamma}^* + \tilde{\gamma}_p^*) e^{+i\varphi}] & \mu_B B g_e e^{+i\varphi} & 0 & -2(\delta_0 + \Delta_0) & \left| \downarrow; \psi_h^- \right\rangle \end{pmatrix} \quad (2.41)$$

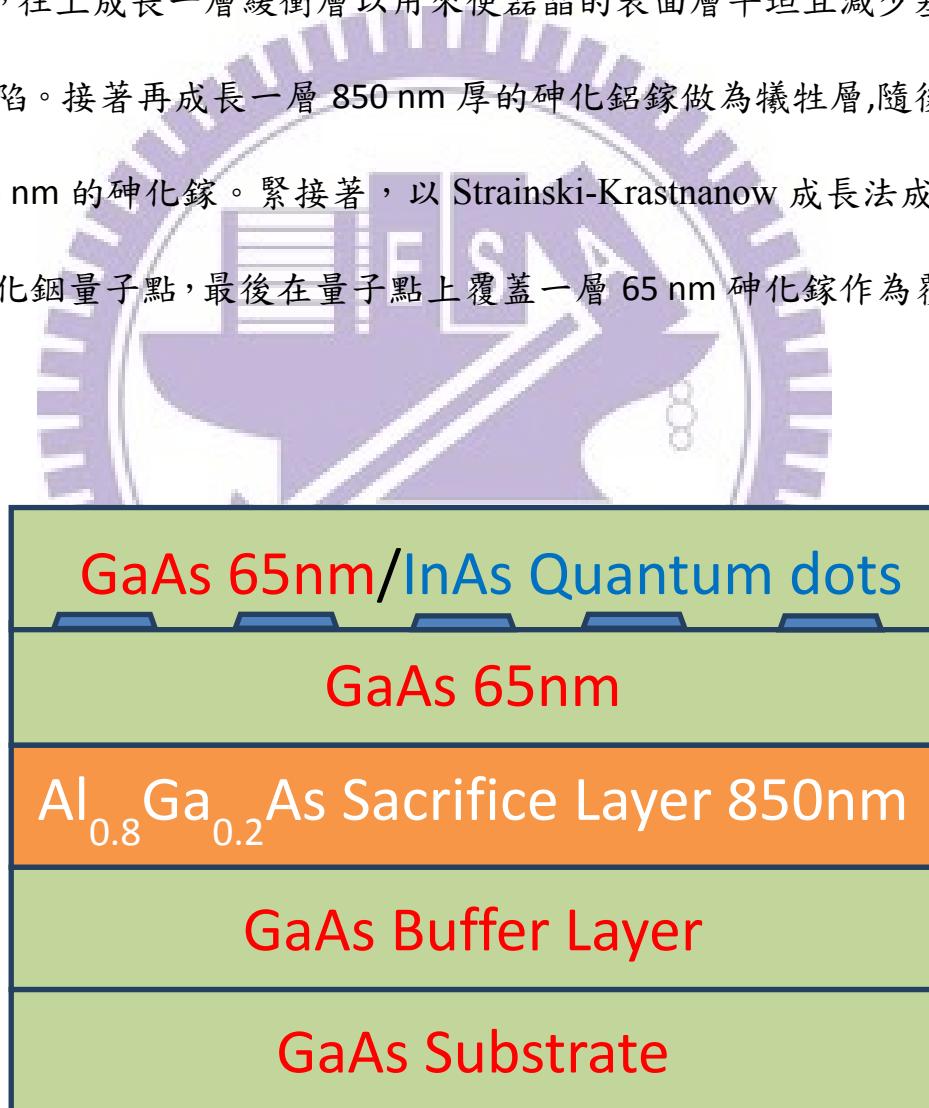
其中， $\tilde{\Delta}_l = \Delta_l e^{-2i\theta_d}$ ， $\tilde{\gamma} \equiv \frac{\rho e^{-2i\theta_s}}{\sqrt{3}\Delta_{lh}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} = \gamma e^{-2i\theta_s}$ ， $\tilde{\gamma}_p \equiv \frac{\rho_p e^{-2i\theta_p}}{\sqrt{3}\Delta_{lh}} \frac{I_{hl}}{I_{hh}} = \gamma_p e^{-2i\theta_p}$ ， $\theta_d$  為

量子點伸長方向， $\theta_s$  為量子點受應變方向， $\theta_p$  為外加應變之方向。

## 第三章 樣品及實驗架構

### 3.1 樣品結構

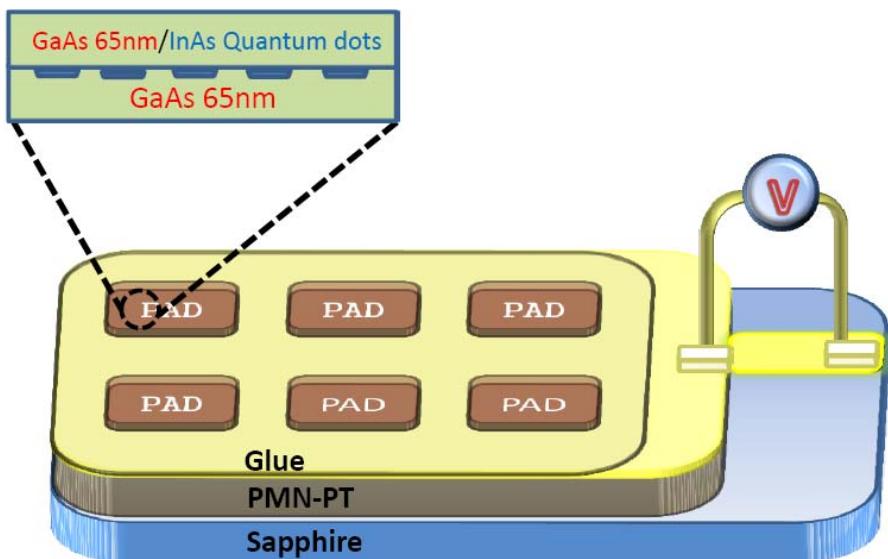
本論文中所採用的樣品為砷化銦(InAs)單量子點,是由交通大學電子工程學系林聖迪老師團隊所提供之樣品。樣品採用分子束磊晶(MBE)成長,其結構如【圖 3-1】所示。樣品在成長的過程中,首先以砷化鎵(GaAs)為基板,往上成長一層緩衝層以用來使磊晶的表面層平坦且減少基板表面缺陷。接著再成長一層 850 nm 厚的砷化鋁鎵做為犧牲層,隨後再成長 65 nm 的砷化鎵。緊接著,以 Strainski-Krastanow 成長法成長一層砷化銦量子點,最後在量子點上覆蓋一層 65 nm 砷化鎵作為覆蓋層。



【圖 3-1】 砷化銦量子點樣品結構圖。

在實驗的時候，為了能在量子點上施加額外的應力來產生應變，因此我們將帶有量子點的樣品黏貼在壓電材料上。所謂壓電材料，指的是外加電場在該材料上，材料表面將會伸張或壓縮的一種材料，而該現象稱壓電效應。

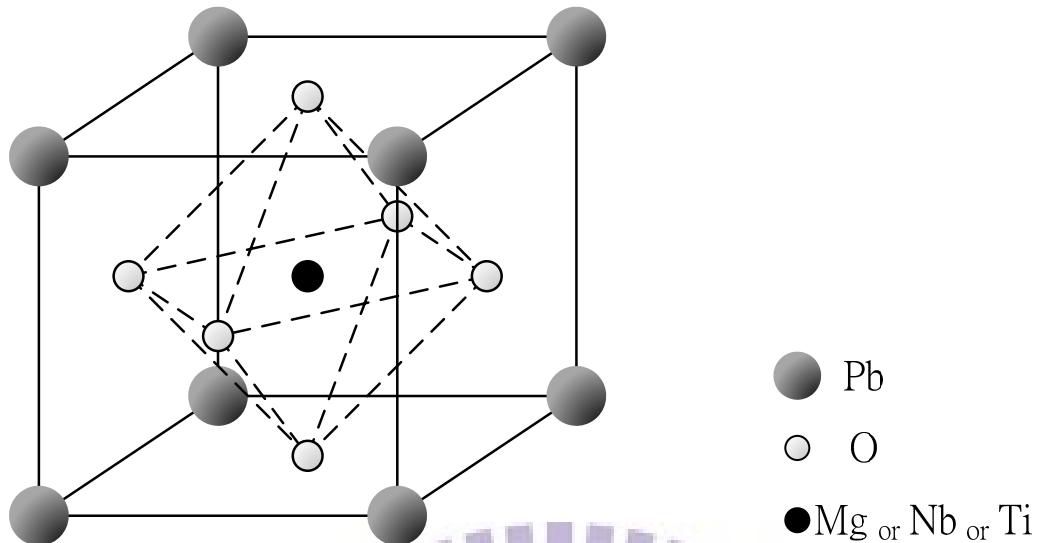
另外，為了可以方便我們確認量子點的位置，我們必須將樣品切割出許多方形圖案並標記劃分成幾個區域。首先，我們在量子點樣品旋佈一層光阻，接著利用電子束(e-beam)微影的方式，即可在光阻上曝光出我們所要的方形圖案，其大小為  $15\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ ，光阻再來扮演著準備往下蝕刻遮罩的角色。利用濕式蝕刻法，蝕刻掉未被光阻遮蔽的砷化鎵層，這樣子樣品即被分割成數塊方形圖案。完成後將樣品以丙酮(Acetone)去除光阻再以去離子水潔淨樣品，之後再用氫氟酸(HF)過蝕刻(over etching)掉所有犧牲層中的砷化鋁鎵使量子點樣品落在砷化鎵基板上。接下來將壓電材料 PMN-PT 以旋轉塗佈的方式旋佈一層瞬間接著劑(Superglue)，然後把樣品倒過來覆蓋在 PMN-PT 並施力於樣品使其黏貼於 PMN-PT 上頭。最後在 PMN-PT 上下兩端接上電極，便可以外加偏壓產生一電場使該壓電材料壓縮或伸張。



【圖 3-2】可外加應力之砷化銦量子點元件結構圖。

### 3.2 PMN-PT 材料簡介以及其工作原理

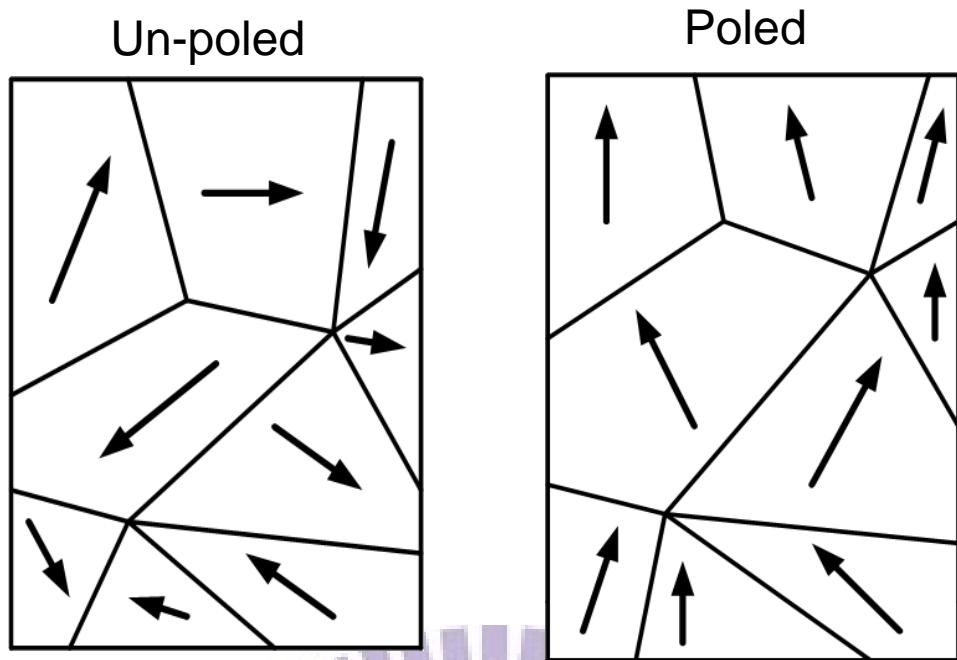
本論文所使用的壓電材料為(011)晶面的鈮鎂酸鉛-鈦酸鉛晶體，化學式為 $[\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3]_{0.72} \cdot [\text{PbTiO}_3]_{0.28}$  簡稱 PMN-PT，為一  $\text{ABO}_3$  型化合物，又稱鈣鈦礦(Perovskite)結構。其中本論文所使用 PMN：PT 之比例為 72:28。其中 A 為  $\text{Pb}^{+2}$ ，B 代表  $\text{Ti}^{+4}$ 、 $\text{Mg}^{+2}$  及  $\text{Nb}^{+5}$ ，其結構與面心立方雷同，但在立方中心存在 B 離子。如【圖 3-3】所示。



【圖 3-3】  $\text{ABO}_3$  型化合物結構示意圖。

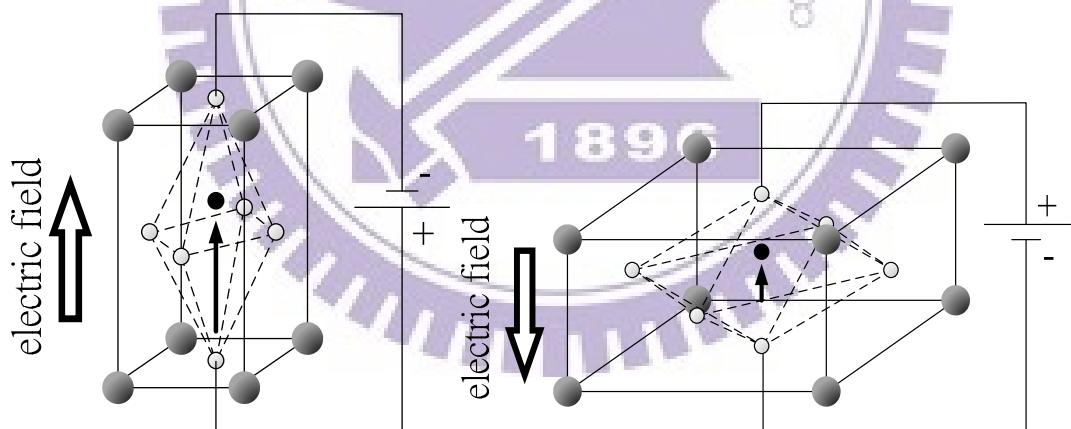
此晶體在正常情況下，因為正中心的 B 離子會稍微偏離正中心而造成正負離子的分離而產生所謂的電偶極矩(Electric Dipole)，這些電偶極矩會有區域性的方向且隨機分布在材料內，總體的淨值為零，如圖【圖 3-4-1】所示。在高溫環境下，外加電場後，這些電偶極矩的方向大都會順著電場方向，如圖【圖 3-4-2】。此動作稱做極化(Poling)。

實驗中，我們會在極化狀態下降低環境溫度，低溫時晶格被凍結於 B 離子稍微偏離立方正中央的狀態。若外加和極化方向同向的電場時，B 離子會更加遠離立方中心，造成晶面產生壓應變【圖 3-5-1】，反之，外加和極化方向反向的電場，B 離子較接近立方中心，晶面上便產生張應變【圖 3-5-2】。



【圖 3-4-1】電偶極矩未極化分布    【圖 3-4-2】電偶極矩極化後分布

【圖 3-4】壓電材料內電偶極矩分布示意圖。吳朗 “電子陶瓷壓電”



【圖 3-5-1】

【圖 3-5-2】

【圖 3-5】壓電材料在不同偏壓時的形變方式示意圖。

【圖 3-5-1】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 3-5-2】是施加逆向偏壓，晶體相應電場方向被壓縮，但在側邊被伸張。吳朗 “電子陶瓷壓電” [19]。

晶體應變量的大小  $\varepsilon_\alpha$  可以藉由壓電常數  $d_\alpha$  外加電場  $E_z$  計算，關係式如

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

其中， $\varepsilon_\alpha$  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； $d_\alpha$  代表各個方向的壓電常數(Piezoelectric constants)。 $z$  方向的電場大小由  $E_z = V * d$ ，當中  $d$  為 PMN-PT 材料厚度， $V$  為外加偏壓。文獻[20]指出壓電常數會隨著溫度有所不同而不同，應變量在低溫情況下(10K)為其在室溫下的  $1/4$ 。[20]

對與不同晶面的 PMN-PT 其應變方式也不同，基本上有[001]和[011]兩種，分別對應到所謂的雙軸應變(Biaxial strain)以及單軸應變(Uniaxial strain)。雙軸應變指的是外加順向偏壓在[001]方向，晶體除了會在[001]伸長外，還會在[100]和[010]感受到壓縮的應力。單軸應變指的是外加偏壓在[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。下表為兩種不同晶面之 PMN-PT 在各方向之壓電常數。[21]

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

【表 3-1】[001]及[011]之 PMNPT 在不同方向下之壓電常數

### 3.3 顯微光激螢光量測系統( $\mu$ -Photoluminescence)

本論文所使用的實驗系統為顯微光激螢光量測系統。此系統由激發系統以及監控系統兩部分所組成。在激發系統下，首先我們將樣品置入低溫恆溫腔(Cryostat)，並通入液態氦(Helium)使得腔體內溫度保持5~10 K以消除聲子(Phonon)的影響，方能量到量子點螢光訊號。在激發光源的選擇中，因為砷化銦量子點成長在砷化鎵上，而砷化鎵的能隙在低溫中約 1.52 eV(816 nm)，我們必須選擇比其能隙(Bandgap)還大的激發光源才能激發出量子點中電子電洞對，故採用波長為632.8 nm 的氦氖(He-Ne)雷射。

藉由反射鏡以及 50X 近紅外波段用物鏡將雷射引入並聚焦激發在方形圖案中的量子點上，量子點中位於價電帶的電子會吸收注入載子的能量而跳躍至導帶而留下一個電洞在價電帶，此時，高能量的電子會經由晶格碰撞釋放能量掉落在導帶底部。同樣地，高能量的電洞也會經晶格碰撞釋放能量掉落在價電帶頂部，接著兩者輻射複合而且放出光子，而該光子能量大約等於該材料之能隙。此行為即為光激螢光的基本原理。將激發出的螢光經反射鏡引入光譜儀進行分光，靠著電荷耦合元件(Charge-coupled Device)來偵測不同波段螢光的強度。最後將訊號傳送到電腦，即可繪出光激螢光光譜。此方法提供了一個非破壞性且有效分析半導體能帶結構的好手段。

在監控系統中，由於在樣品上有許多方形圖案，為了讓我們辨認激發在哪個圖案上的量子點，且量子點對於雷射激發的位置十分敏感，所以必須即時監控雷射激發位置。監控系統由白光(Lamp)、CCD 攝影機和監視器(Monitor)。利用分光鏡將白光引入且聚焦於樣品上，在樣品上反射回來的光源由另一面分光鏡引入 CCD 攝影機並將影象由監視器顯現出來，我們可以透過監視器觀察到樣品表面情形以及雷射聚焦情況跟激發位置。若想要改變激發位置，則可一邊觀察監視器一邊移動低溫恆溫腔下的 XY 移動平台。此監控系統與激發系統可獨立作業互不影響，量測光譜時只要將分光鏡推開便可進行量測動作。

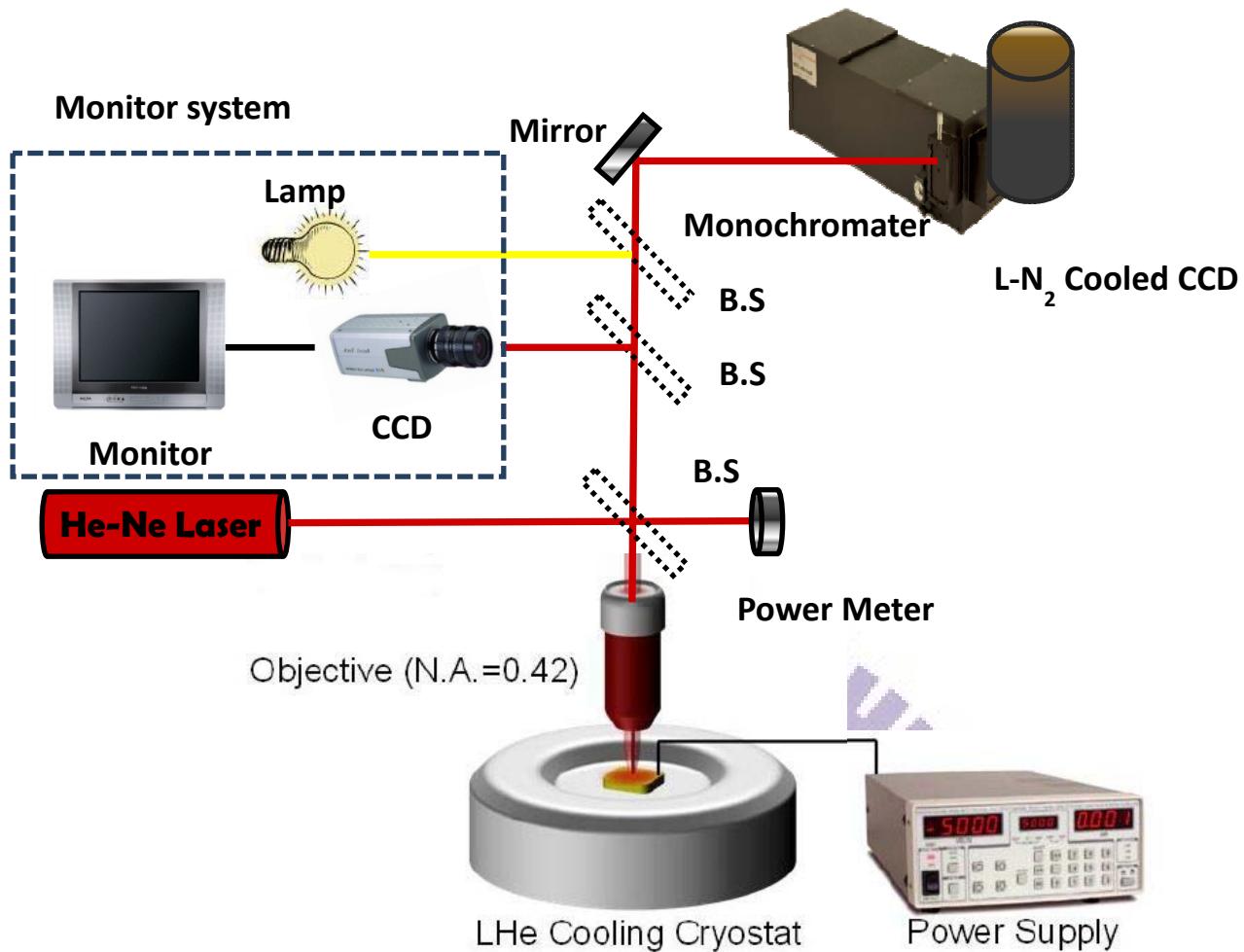
為了分析光激螢光的偏振性質，只需要在螢光進入光譜儀之前架設一個二分之一波片以及一偏振晶體。藉由旋轉二分之一波片來改變波片光軸與偏振晶體的夾角，便可使特定角度偏振的螢光進入光譜儀進行解析。

在實驗中為了改變量子點的應變，將外加偏壓在量子點樣品下的壓電材料使其產生形變。在實驗前，必須先對元件施加偏壓，將壓電材料 PMN-PT 給極化。利用電源供應器(Power supply)，PMN-PT 的上端當作接地端，下端輸入正電壓，如此一來將產生向上的電場，同時也決定了極化方向。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以及低溫環境下，也能被施加電場，使

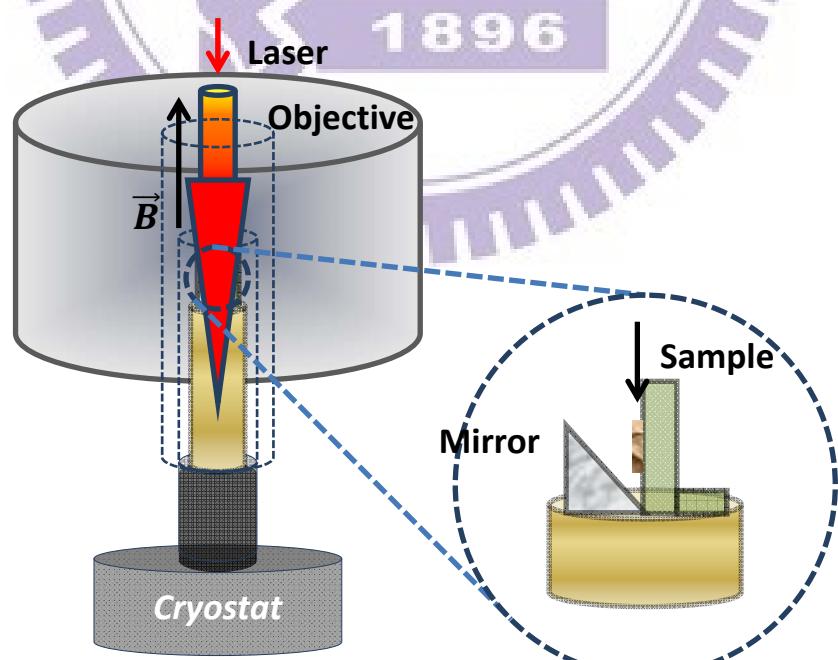
用了真空導入端子(Feedthrough)，讓電源供應器的電壓能輸入至樣品上。

在外加磁場方面,本論文所外加的磁場為方向與樣品平行的水平磁場。如【圖 3-7】所示。將樣品黏貼於 L 型基座上，這樣即可使磁場方向與樣品表面平行。另外將雷射以及白光透過一面緊貼樣品的 45 度反射鏡聚焦在樣品表面上，即可同時觀測並量測其在外加磁場下的螢光光譜。





【圖 3-6】顯微光激螢光量測系統實驗裝置。



【圖 3-7】樣品於水平磁場下之示意圖。

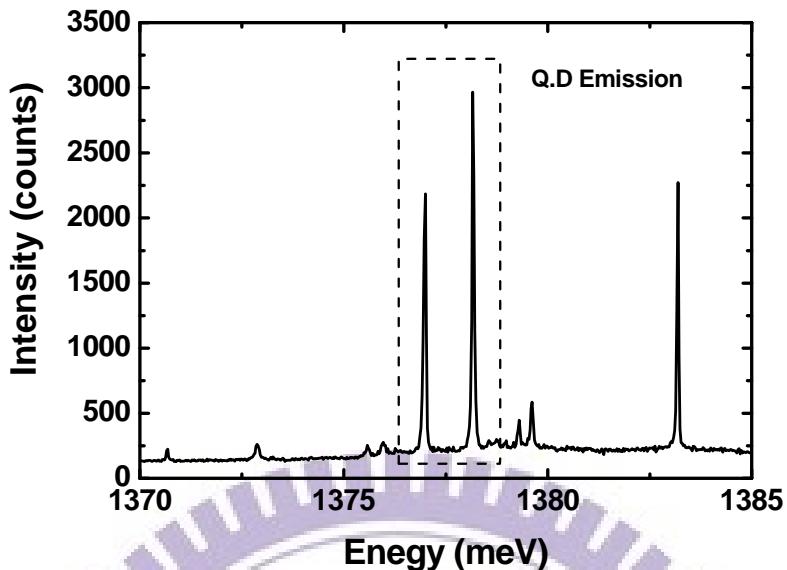
## 第四章 光譜分析與討論

### 4.1 單量子點顯微光激螢光光譜

【圖 4-1】為實驗所量測到的量子點光激螢光光譜。在圖中可以發現到有一些極細的譜線，而這些譜線通常半高寬都小於  $100 \mu\text{eV}$ 。而且譜線訊號對激發的位置十分敏感，故此判斷為量子點螢光訊號。

為了得到單量子點的螢光訊號，在元件製備時，我們將樣品切成了若干個方形圖案以便我們定位量子點。每個圖案上充滿著數十個到數百個量子點。基於量子點訊號對於雷射聚焦位置十分敏感，故我們可以透過雷射激發在不同圖案，不同位置。藉由光譜分析，來判別是否有量子點存在、量子點數量密度、激子能量或螢光強度等。一般而言，在低功率激發的情況下，我們會看到若干條乾淨的單一譜線，此為激子訊號，經過篩選，我們可以分析我們所需要的單量子點訊號。

在不同雷射激發功率的情況下，光譜如【圖 4-2】所示。在低功率激發時，我們可以看到光譜中能量在  $1377 \text{ meV}$  的地方有單一譜線。從而判斷為激子訊號(X)，而隨著雷射激發功率的提高，光譜中在能量  $1378.1 \text{ meV}$  出現第二根譜線，從而判斷為雙激子訊號(XX)。因為注入載子的增加，量子點訊號也有些許新的譜線產生。



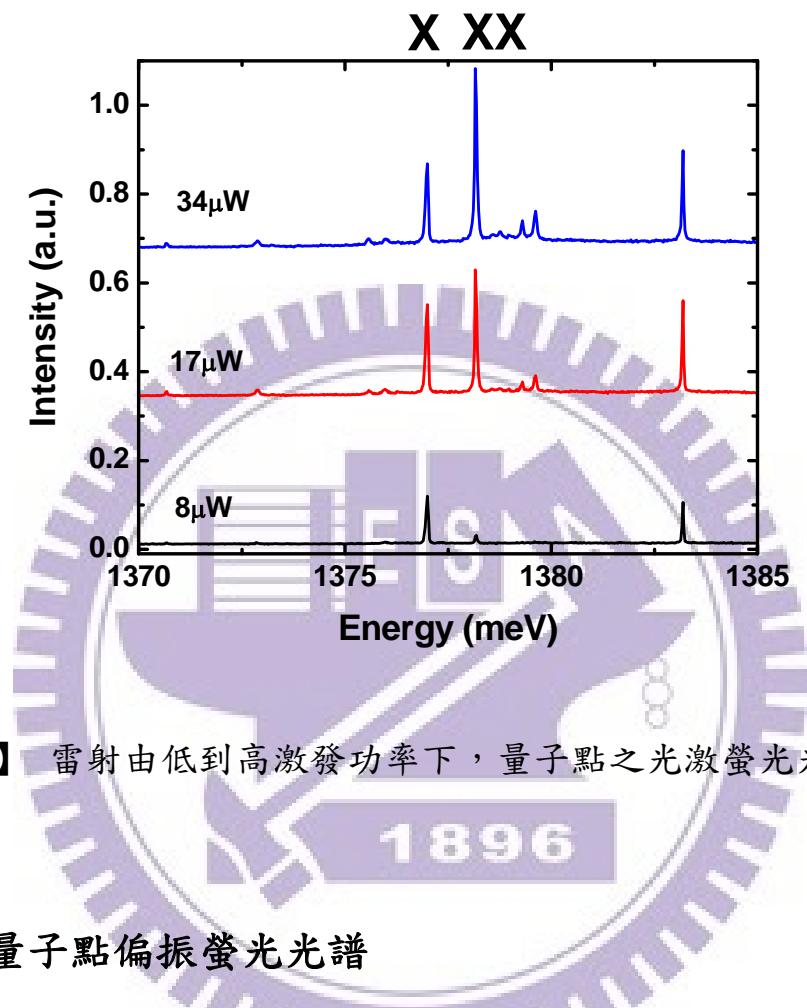
【圖 4-1】量子點顯微光激螢光光譜圖。

雷射激發功率的增強，會導致樣品中所產生的電子電洞對在單位時間內增加，這就提高了量子點捕捉到電子電洞對的機率。而電子電洞對會因庫倫作用而形成激子。低功率激發時，電子電洞對被量子點捕捉到的機率較低，再捕捉到下一對電子電洞對前，激子便已經以光子的形式放出能量，即為激子訊號。隨著激發功率的增加，電子電洞對被捕捉的機率提高，在激子以光子形式釋放前，很容易就捕捉到下一組電子電洞對，而原先的激子會因為後來又填入下一組電子電洞對庫倫作用力的影響，從而輻射複合放出不同能量的光子，即為雙激子訊號。

同時，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。一般而言，激子螢光強度通常與激發雷射功率的一次方成比例。

而雙激子螢光強度則與激發雷射功率呈平方的關係。

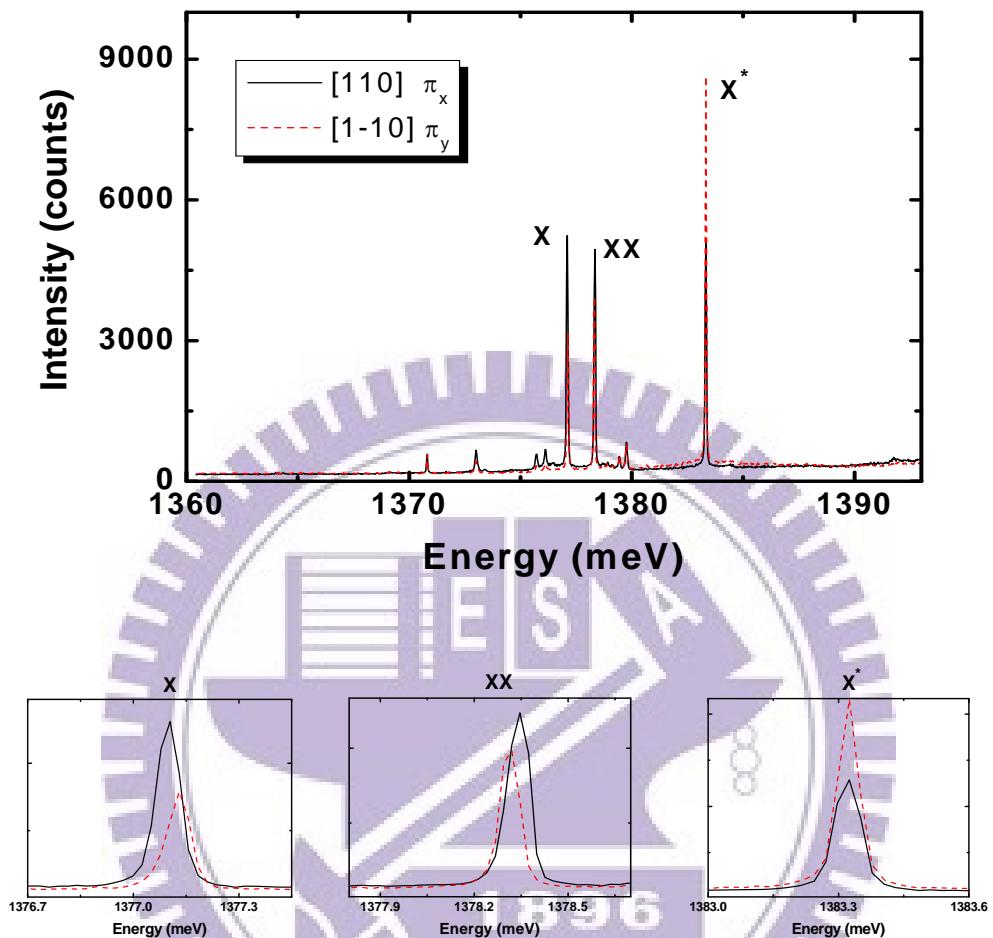


【圖 4-2】雷射由低到高激發功率下，量子點之光激螢光光譜圖。

## 4.2 單量子點偏振螢光光譜

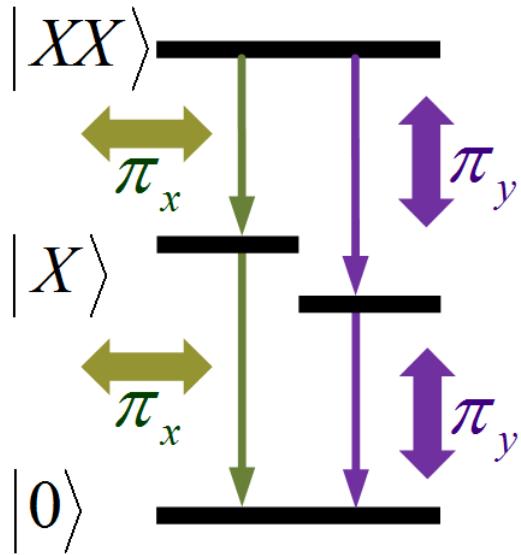
在理想狀態下，量子點中激子的能階應為簡併態且放出的光子應為圓偏振光，應沒有所謂的精細結構分裂。而在實驗中，在不同的偏振角度下，我們確實觀察到了能階不簡併所造成的精細結構分裂，且放出的光子為相互正交的兩個線偏振光，其能階如【圖4-4】所示。為了分析單量子點激子和雙激子的精細結構分裂，與螢光偏極化方向。我們使用二分之一波片和偏振晶體來量測各種偏振方向的螢光訊

號。



【圖 4-3】量子點的水平( $\pi_x$ )和垂直( $\pi_y$ )線偏振光激螢光光譜。

【圖4-3】為量測平行於樣品[110]方向和[1-10]方向得到的線偏振螢光訊號，分別定義為 $\pi_x$ 和 $\pi_y$ 。在量子點訊號中僅激子和雙激子有精細結構分裂，且其偏振方向相反。通常，在激子螢光中， $\pi_x$ 的能量高於 $\pi_y$ 的能量；而雙激子則是 $\pi_y$ 具有較高能量。此外，帶電激子則不具有精細結構分裂。



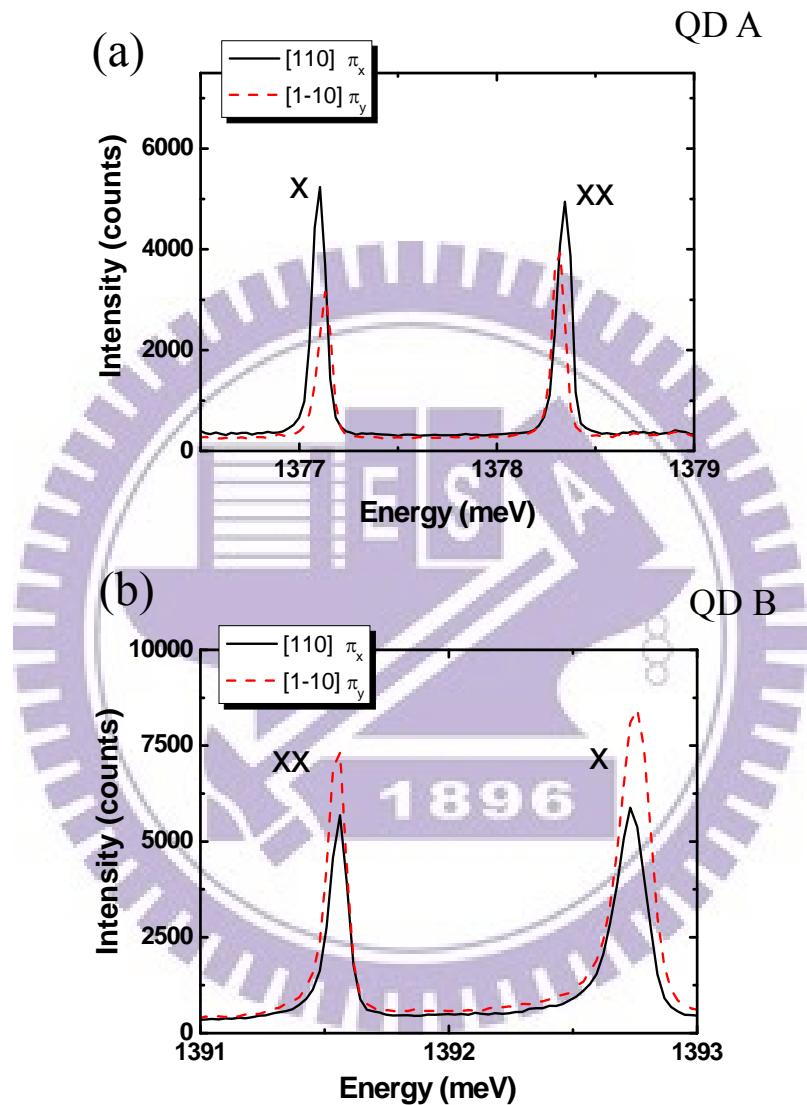
【圖4-4】受形狀不對稱及受應力作用下，量子點之能階圖。

造成量子點有精細結構分裂的原因可以由電子電洞的交換作用來解釋。電子電洞交換作用中的短程交換作用會造成明激子與暗激子能階分裂  $\delta_0$ 。此時激子與雙激子的螢光偏振方向經2.1節推導均為圓偏振。由於量子點本身因形狀不對稱(Shape Asymmetry)、應變(Strain)以及壓電效應(Piezoelectricity effect)等。使量子偶限對稱性被破壞。

電子電洞形成電偶極(Dipole)，而形成長程交互作用，因而導致明激子能階分裂。該分裂即為精細結構分裂，如【圖4-4】。而精細結構分裂只存在中性激子，例如激子和雙激子。帶電激子因為其電子或電洞的總自旋為零， $H_{EX} = 0$ ，故沒有精細結構分裂。

在實驗中，我們定義精細結構分裂為  $\Delta_{FSS} = E_X(\pi_x) - E_X(\pi_y)$ ，大部分精細結構分裂為正值，而我們要尋找的量子點的狀況與一般的相反，即  $\pi_y$  的能量高於  $\pi_x$  的能量，精細結構分裂為負值。由文獻[10]指出透

過水平磁場可以造成精細結構的分裂量往正值方向變大，故我們希望藉此將激子能階調變回簡併態。【圖4-5】為兩種情況下，精細結構分裂為負值之例子。



【圖 4-5】量子點  $E_X(\pi_x) < E_X(\pi_y)$  之偏振螢光光譜圖。

(a)  $E_X < E_{XX}$  之情況

(b)  $E_X > E_{XX}$  之情況

造成有上述兩種情況影響的原因與本身載子之間的庫倫作用力有關。

激子與雙激子複合之螢光能量可表示為

$$\begin{aligned}E_X &= \varepsilon_e + \varepsilon_h - V_{eh} \\E_{XX} &= E_X + V_{ee} + V_{hh} - 2V_{eh}\end{aligned}\quad (4.1)$$

其中  $\varepsilon_e$  及  $\varepsilon_h$  分別是電子和電洞在 S 裂層中之動能，而  $V_{ij}$  為庫倫作用能，

與電子電洞之波函數有關，表示如下

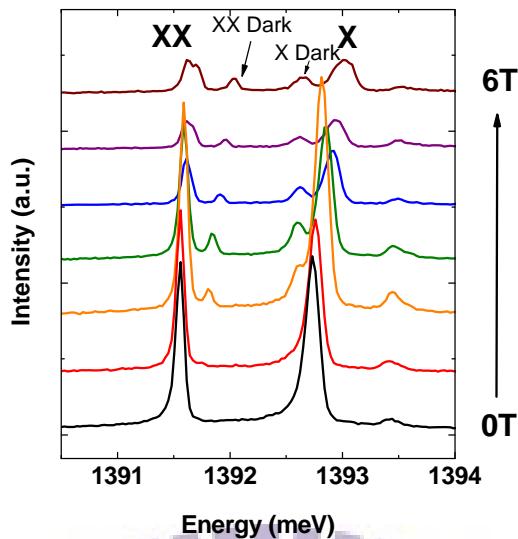
$$V_{ij} = \int d^3\vec{r} d^3\vec{r}' \psi_i^*(\vec{r}) \psi_j^*(\vec{r}') \frac{e^2}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \psi_j(\vec{r}') \psi_i(\vec{r}) \quad (4.2)$$

其中  $ij=e,h$ 。由於量子侷限效應，電子電洞被限制在量子點中，載子之間並無法透過改變距離來改變庫倫作用力。故載子間的直接庫倫作用能主要由載子在量子點中的波函數分布來決定。而當中  $V_{ee} \neq V_{hh} \neq V_{eh}$  是歸咎於電子及電洞在量子點中侷限程度不同即波函數分布不同而導致載子間庫倫作用不同。故  $E_{XX} - E_X = V_{ee} + V_{hh} - 2V_{eh}$ 。當  $V_{ee} + V_{hh} - 2V_{eh} > 0$  則  $E_{XX} > E_X$ ，相反，若  $V_{ee} + V_{hh} - 2V_{eh} < 0$  則  $E_{XX} < E_X$ 。

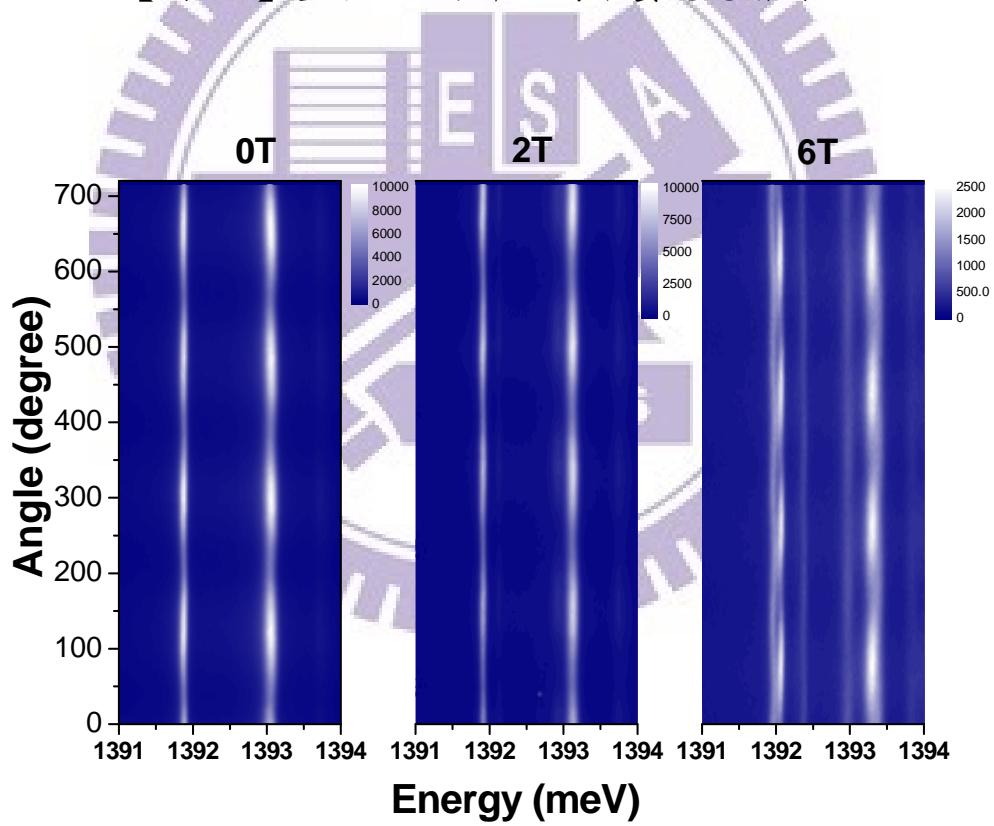
### 4.3 單量子點磁場顯微螢光光譜

4.2 節中說明了單量子點中電子-電洞交換作用力會使得激子能態出現精細結構。接下來，透過外加水平磁場於量子點，希望能藉此改變激子能態結構，最終目的是讓激子回到簡併能態。

【圖 4-6】和【圖 4-7】為量子點在水平磁場下的不同偏振方向的螢光光譜等高線圖。從【圖 4-7】我們可以看出水平磁場下量子點在磁場，激子以及雙激子精細結構有先變小的趨勢。而後在高磁場的情況下，激子以及雙激子的精細結構有變大的趨勢。【圖 4-6】中，我們同時也觀察到在能量低於激子螢光以及高於雙激子螢光約  $0.17\text{meV}$  處多出了一條譜線，其來源是暗激子與明激子的能態混合後，使暗激子有機會跟光子耦合發光，因此能在譜線中觀察到暗激子螢光訊號。同時也可以觀察到激子以及雙激子的能量峰值隨著磁場的增加而有藍移(Blue shift)的現象。激子螢光能量的改變主要來自賽曼效應以及反磁能移所貢獻[15]-[17]。其中，賽曼效應會改變激子螢光訊號間的精細結構分裂，而反磁能移會使螢光訊號的能量藍移。



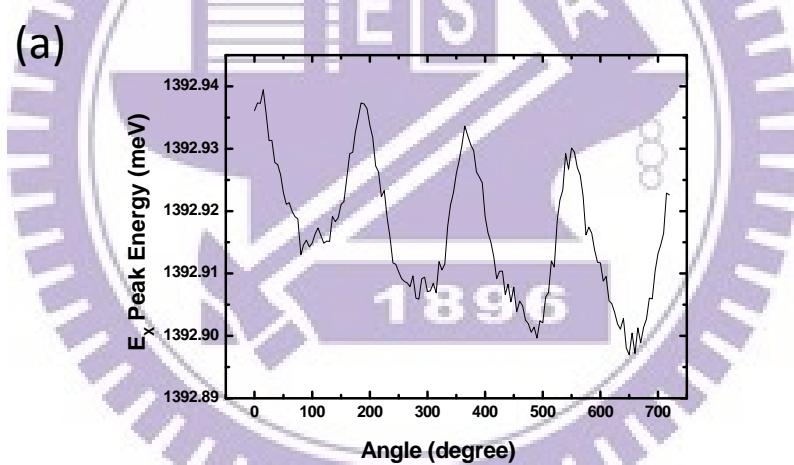
【圖 4-6】量子點於水平磁場下螢光光譜圖。



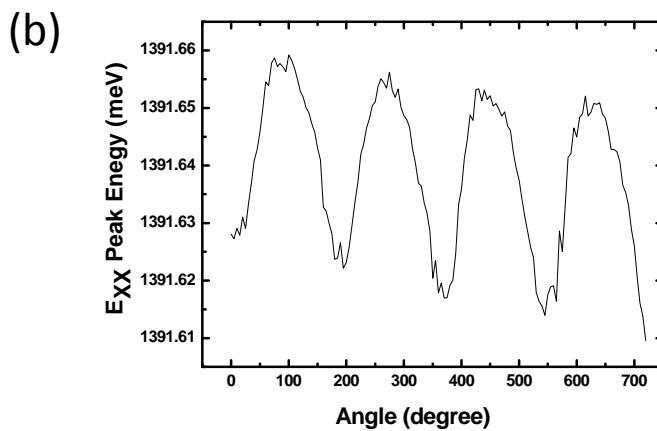
【圖 4-7】水平磁場下量子點激子及雙激子能量隨偏振

角度變化等高線圖。

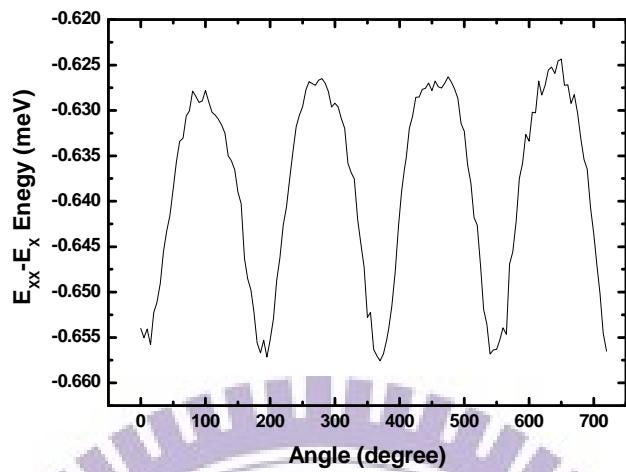
由於系統解析的原因會造成在量測光譜中精細結構分裂的不準確性，在此，我們同時將雙激子能量峰值隨偏振角度變化以及激子能量峰值隨偏振角度的變化去作一個相減的動作，如【圖 4-8】，如此我們可以將系統在量測過程中所造成的飄移(Diffusion)給消除掉。接著我們取若干次完整波形中波峰到波谷之差，再取其平均即為該量子點的精細結構分裂。而在本徵軸(Eigenaxes)上，我們固定取第一個波峰或波谷的角度，再取第二個波峰或波谷的角度並減去 180 度，以此類推。取 2~3 次，再取其平均，即決定其本徵軸之角度。



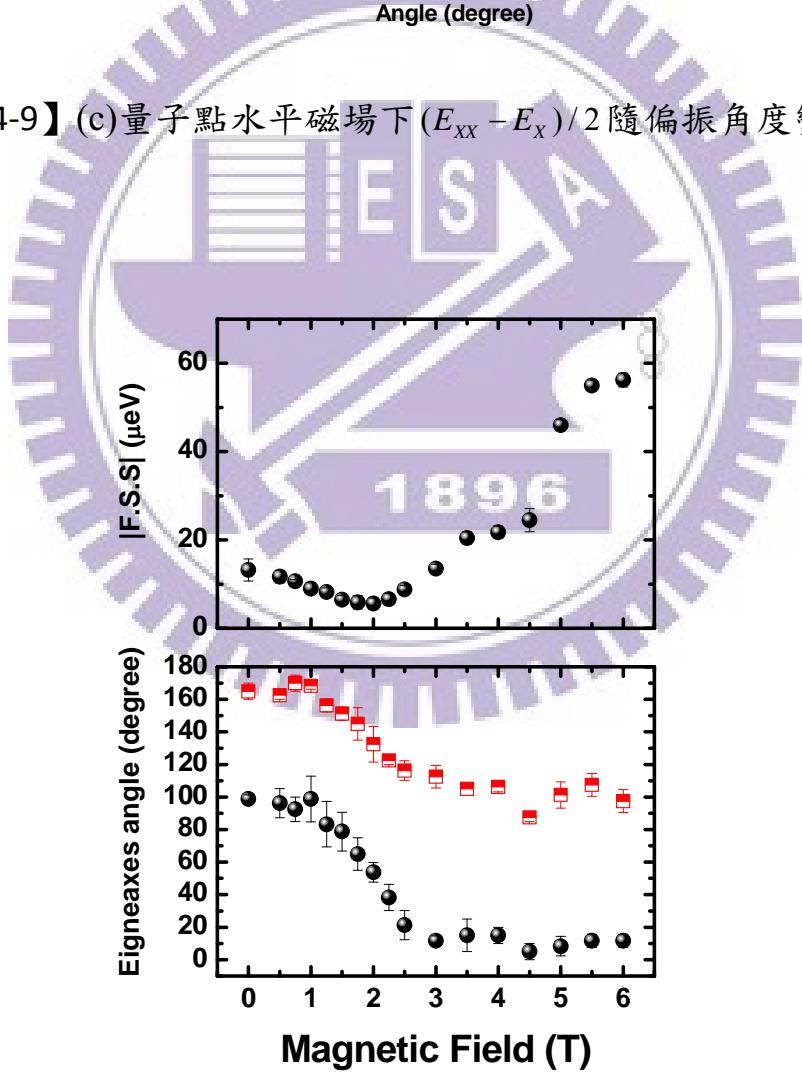
【圖 4-9】(a) 激子能量峰值隨偏振角度變化圖



【圖 4-9】(b) 雙激子能量峰值隨偏振角度變化圖



【圖 4-9】(c)量子點水平磁場下  $(E_{xx} - E_x)/2$  隨偏振角度變化圖。



【圖 4-10】量子點精細結構分裂以及本徵軸隨磁場變化圖。

【圖 4-10】指出了精細結構分裂隨著磁場的變化，在這邊定義  $[110]$  及  $[1\bar{1}0]$  分別為 0 度跟 90 度。我們觀察到隨著磁場的增加，其精細結構分裂絕對值有一先變小再變大的趨勢。可是該分裂並不會在變小的過程中，使該量子點的能態結構回到簡併態。且有一個最小精細結構分裂的值產生。若再繼續加大磁場，可以看到精細結構分裂會隨著磁場的增加而變大，並且量子點中激子以及雙激子的本徵軸會隨磁場而旋轉。接下來，我們希望藉由從(2.41)式中的漢米爾頓去探討造成能態結構無法回到簡併態的原因以及在怎樣的條件下可否造成其能帶結構回到簡併態。

$$H_h \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \tilde{\Delta}_1 + 4\delta_0 \tilde{\gamma} & \mu_B B g_e e^{+i(\varphi+45^\circ)} & \mu_B B (-g_{h3} e^{+i(\varphi+45^\circ)} + 2\sqrt{3} g_{h1} \tilde{\gamma} e^{-i(\varphi+45^\circ)}) & \mu_B B g_e e^{-i(\varphi+45^\circ)} & \downarrow; \psi_h^+ \\ \tilde{\Delta}_1 + 4\delta_0 \tilde{\gamma}^* & 0 & \mu_B B (-g_{h3} e^{-i(\varphi+45^\circ)} + 2\sqrt{3} g_{h1} \tilde{\gamma} e^{+i(\varphi+45^\circ)}) & -2(\delta_0 + \Delta_0) & 0 & \uparrow; \psi_h^- \\ \mu_B B g_e e^{-i(\varphi+45^\circ)} & \mu_B B (-g_{h3} e^{+i(\varphi+45^\circ)} + 2\sqrt{3} g_{h1} \tilde{\gamma} e^{+i(\varphi+45^\circ)}) & 0 & 0 & -2(\delta_0 + \Delta_0) & \uparrow; \psi_h^+ \\ \mu_B B (-g_{h3} e^{-i(\varphi+45^\circ)} + 2\sqrt{3} g_{h1} \tilde{\gamma} e^{-i(\varphi+45^\circ)}) & \mu_B B (-g_{h3} e^{-i(\varphi+45^\circ)} + 2\sqrt{3} g_{h1} \tilde{\gamma} e^{+i(\varphi+45^\circ)}) & \mu_B B g_e e^{+i(\varphi+45^\circ)} & \mu_B B (-g_{h3} e^{+i(\varphi+45^\circ)} + 2\sqrt{3} g_{h1} \tilde{\gamma} e^{-i(\varphi+45^\circ)}) & \mu_B B g_e e^{-i(\varphi+45^\circ)} & \downarrow; \psi_h^- \\ \mu_B B g_e e^{+i(\varphi+45^\circ)} & -2(\delta_0 + \Delta_0) & \mu_B B g_e e^{-i(\varphi+45^\circ)} & 0 & 0 & \uparrow; \psi_h^- \\ \mu_B B (-g_{h3} e^{+i(\varphi+45^\circ)} + 2\sqrt{3} g_{h1} \tilde{\gamma} e^{-i(\varphi+45^\circ)}) & 0 & 0 & -2(\delta_0 + \Delta_0) & -2(\delta_0 + \Delta_0) & \downarrow; \psi_h^- \end{pmatrix} \quad (4.1)$$

上式矩陣中，電洞的  $g$  因子包含兩項，分別是一次方項  $g_{h1}$  以及三次方項  $g_{h3}$ 。由於  $g_{h3}$  的值很小，故通常我們將其忽略不計[15]。假設

$$\Delta_0 = 0 \text{、} \delta_0 = 0.17 \text{meV} \text{、} \Delta_1 = 0.055 \text{meV} \text{、} \Delta_{lh} = 40 \text{meV} \text{、} \rho = -12.5 \text{meV} \text{、} \frac{I_{lh}}{I_{hh}} = 0.33 \text{、}$$

$g_e = -0.65$  、  $g_{h1} = -0.628$  、  $[110]$  及  $[1\bar{1}0]$  分別為 0 度跟 90 度，外加磁場

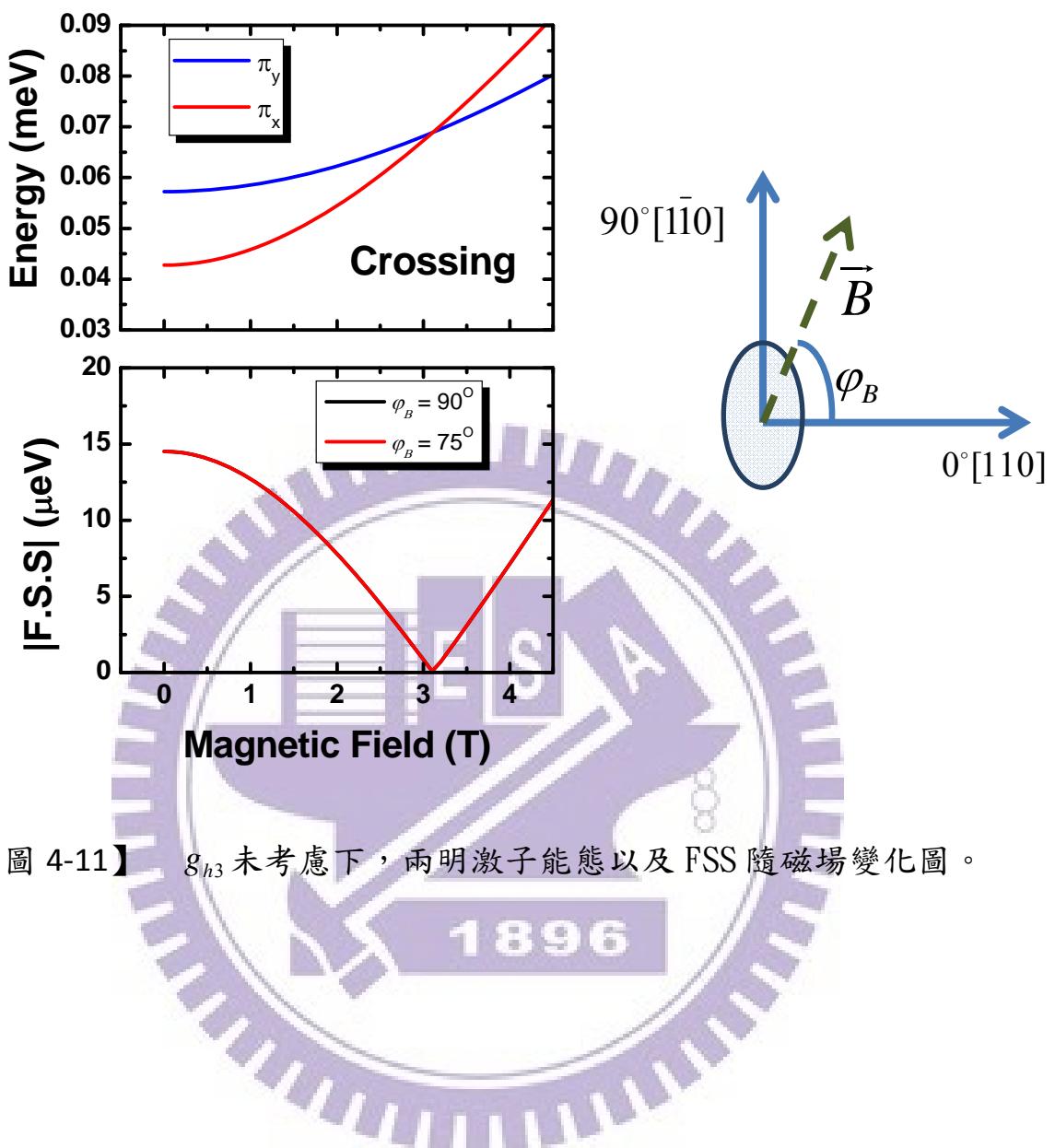
$\vec{B}$  方向設定為  $\varphi_B = 90^\circ$  以及  $\varphi_B = 75^\circ$ ，量子點伸長及受應變方向皆在

$[1\bar{1}0]$  上，模擬兩明激子及精細結構分裂隨磁場(以下簡稱 FSS)的變

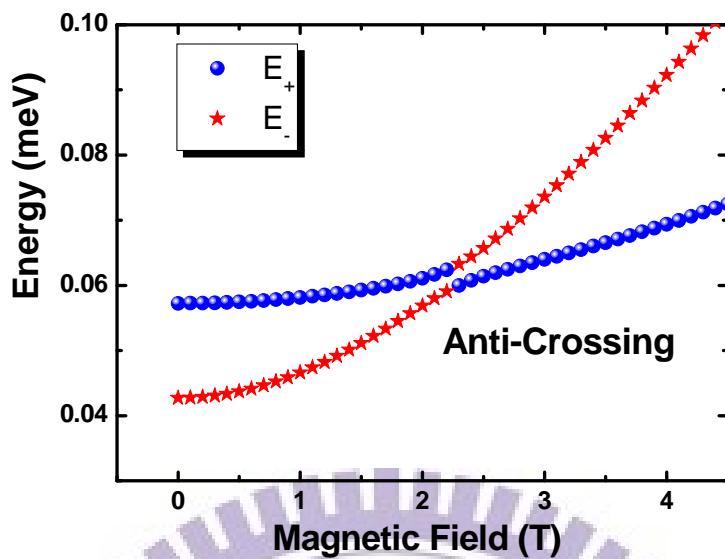
化如【圖 4-11】。從【圖 4-11】中可以知道，兩明激子能態隨磁場變

化在磁場為 3T 附近有交叉的現象，即 FSS 值為 0。而無論外加磁場的方向為何均不會改變其明激子能態隨磁場變化的影響，且能態變化均為交叉現象，即明激子能態可藉磁場調控回簡併態，FSS 為 0。可是我們在實驗中卻沒有觀察到此現象。因此我們將  $g_{h3}$  的貢獻給考慮進去，以  $\delta_0 = 0.17\text{meV}$  、  $\Delta_1 = 0.055\text{meV}$  、  $\Delta_{lh} = 40\text{meV}$  、  $\rho = -12.5\text{meV}$  、  $\frac{I_{lh}}{I_{hh}} = 0.33$  、  $g_e = -0.65$  、  $g_{h1} = -0.628$  、  $g_{h3} = 0.11$ ，外加磁場方向  $\varphi_B = 90^\circ$  以及  $\varphi_B = 75^\circ$ ，進行模擬如【圖 4-12】。外加磁場方向為  $\varphi_B = 90^\circ$  時，明激子能態變化發生交叉現象在磁場約 2.25T 時【圖 4-12-b】，由此說明了  $g_{h3}$  對精細結構分裂透過賽曼效應調控的影響。

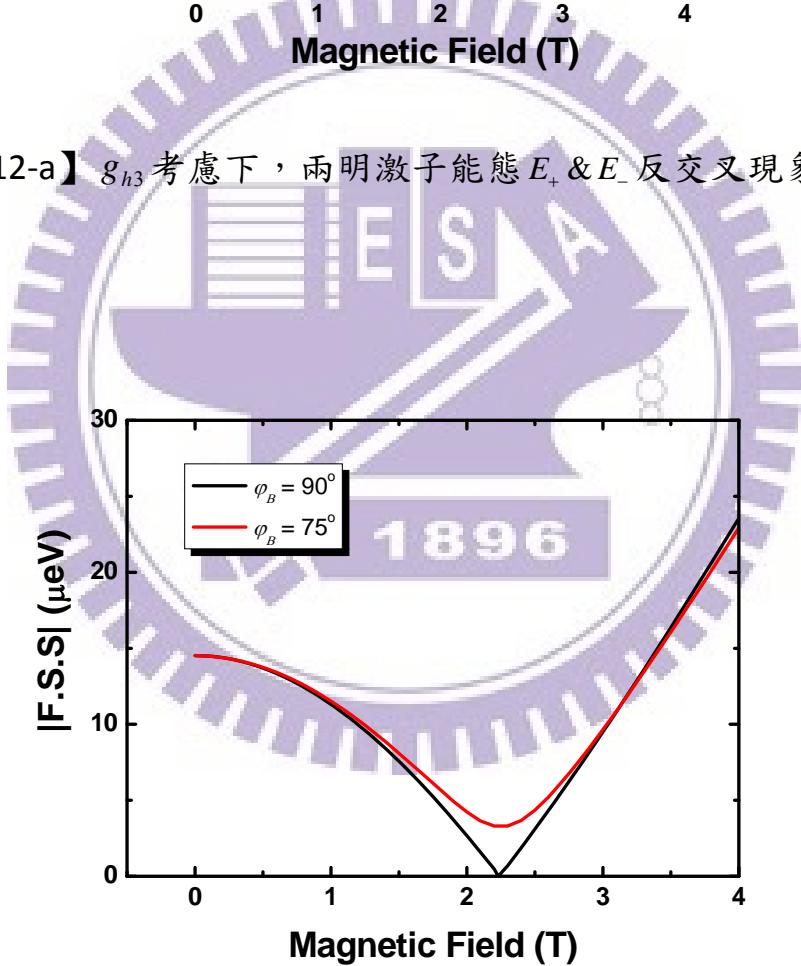
若外加磁場方向為 75 度時，兩明激子能態隨磁場的變化在磁場為 2.25T 由交叉轉變成了反交叉現象【圖 4-12-a】。能態無法藉磁場調變回簡併態，FSS 有一最小值並不會為 0【圖 4-12-b】。故說明  $g_{h3}$  的引入，影響了只有在特定條件下，兩明激子隨磁場變化才為交叉現象，其餘條件則為反交叉現象。



【圖 4-11】  $g_{h3}$  未考慮下，兩明激子能態以及 FSS 隨磁場變化圖。



【圖 4-12-a】 $g_{h3}$  考慮下，兩明激子能態  $E_+$  &  $E_-$  反交叉現象之圖。



【圖 4-12-b】 $g_{h3}$  考慮下，外加磁場於 90 度及 75 度精細結構分裂隨磁場變化圖。

為了探討造成交叉或反交叉現象的成因，我們將賽曼效應視為微擾，利用一階微擾理論，且設定量子點伸長方向、應變方向一致即  $\theta_d = \theta_s = \theta$  則上式可被簡化為一 2X2 矩陣為

$$H_h \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & (\Delta_1 + 4\delta_0 + 2\sqrt{3} \frac{\mu_B B^2 (g_{h1} g_e)}{\Delta_0 + \delta_0}) \gamma e^{-i2(\theta+45^\circ)} + \frac{\mu_B B^2 (-g_{h3} g_e)}{\Delta_0 + \delta_0} e^{+i2(\varphi+45^\circ)} \\ (\Delta_1 + 4\delta_0 + 2\sqrt{3} \frac{\mu_B B^2 (g_{h1} g_e)}{\Delta_0 + \delta_0}) \gamma e^{+i2(\theta+45^\circ)} + \frac{\mu_B B^2 (-g_{h3} g_e)}{\Delta_0 + \delta_0} e^{-i2(\varphi+45^\circ)} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |\downarrow, \psi_h^+ \rangle \\ |\uparrow, \psi_h^- \rangle \end{pmatrix} \quad (4.2)$$

若令  $(\Delta_1 + 4\delta_0 + 2\sqrt{3} \frac{\mu_B B^2 (g_{h1} g_e)}{\Delta_0 + \delta_0}) \gamma = \alpha(B)$ ， $\frac{\mu_B B^2 (-g_{h3} g_e)}{\Delta_0 + \delta_0} = \beta(B)$ ，解出上式

本徵能量為

$$E_{\pm} = \pm \sqrt{\alpha^2 + \beta^2 + 2\alpha\beta \cos[2(\theta + \varphi)]} \quad (4.3)$$

$$FSS = 2\sqrt{\alpha^2 + \beta^2 + 2\alpha\beta \cos[2(\theta + \varphi)]} \quad (4.4)$$

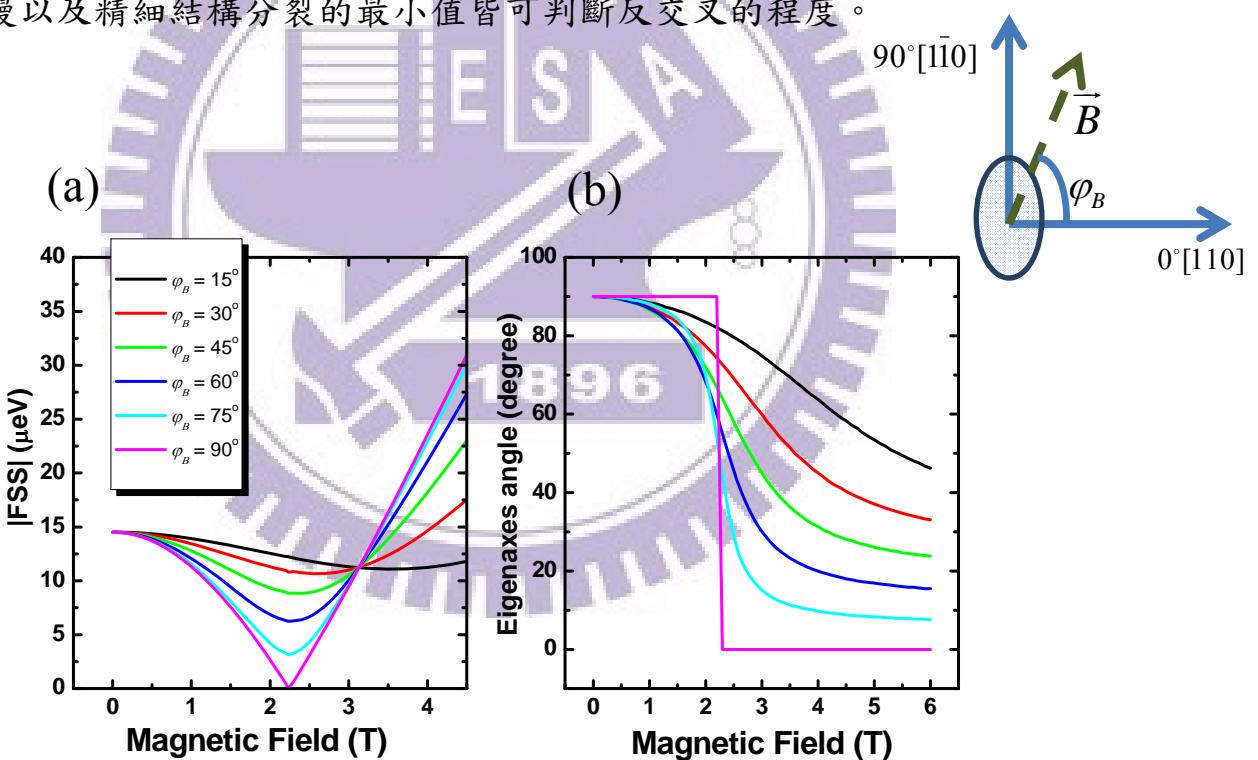
若 FSS 為零，分別有兩種情形可以滿足。

(i) 當  $\alpha = \beta$ ，則  $\theta + \varphi = 90^\circ + k\pi$   $k=\text{integer}$

(ii) 當  $\alpha = -\beta$ ，則  $\theta + \varphi = 0^\circ + k\pi$   $k=\text{integer}$

為了驗證上述條件，【圖 4-13】為模擬外加磁場在不同角度時，本徵軸隨磁場的變化。在此我們設定量子點伸長及受應變方向皆為 90 度， $[1\ 1\ 0]$  及  $[1\ \bar{1}\ 0]$  分別為 0 度和 90 度。從圖中我們依序觀察到，在外加磁場方向對上  $[1\ 1\ 0]$  及  $[1\ \bar{1}\ 0]$  時，其精細結構分裂隨磁場變化都有交叉

的現象，而在其他角度時，精細結構分裂隨磁場變化均出現反交叉現象。另一方面，在精細結構分裂交叉時，本徵軸隨磁場變化在交叉點時，相位皆呈現 90 度急劇反轉。而在反交叉情況下，在接近相位反轉的磁場點時，本徵軸將隨磁場有不同速率的變化，隨著外加磁場越偏離本徵軸時，本徵軸反轉的越緩慢且精細結構分裂可達到之最小值越大。反之，當外加磁場越接近本徵軸時，本徵軸反轉得越急劇，精細結構分裂越接近 0。因此，我們可以知道從本徵軸反轉速率程度得快慢以及精細結構分裂的最小值皆可判斷反交叉的程度。

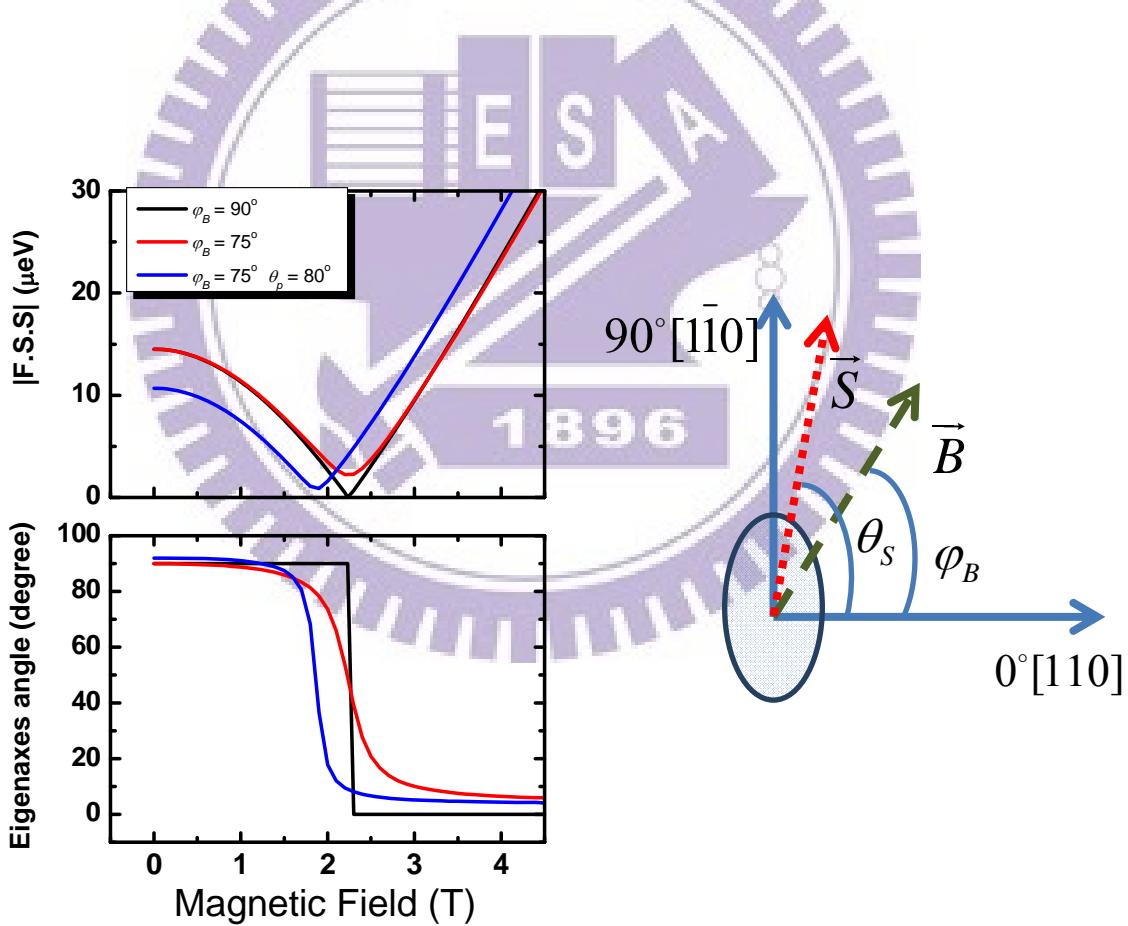


【圖 4-13】模擬外加磁場不同角度下 FSS 及本徵軸隨磁場變化圖。

(a)模擬外加磁場不同角度下 FSS 隨磁場變化圖。

(b)模擬外加磁場不同角度下本徵軸隨磁場變化圖。

基於在實際實驗中，我們無法令量子點伸長方向對齊外加磁場的方向，有可能會造成 3~5 度的誤差。故我們希望藉外加應力去對量子點本徵軸進行一個修正並同時亦可以減少其精細結構分裂量進而減低其反交叉的程度。我們以上述所模擬過的模擬參數進行三種情況之模擬，並定義上  $[110]$  及  $[1\bar{1}0]$  為 0 度及 90 度， $\vec{B}$  和  $\vec{S}$  分別是外加磁場以及外加應變方向， $\varphi_B$  和  $\theta_s$  分別為其相對  $[110]$  之夾角，比較其本徵軸隨磁場的變化以及其精細結構分裂隨磁場變化，如【圖 4-14】。



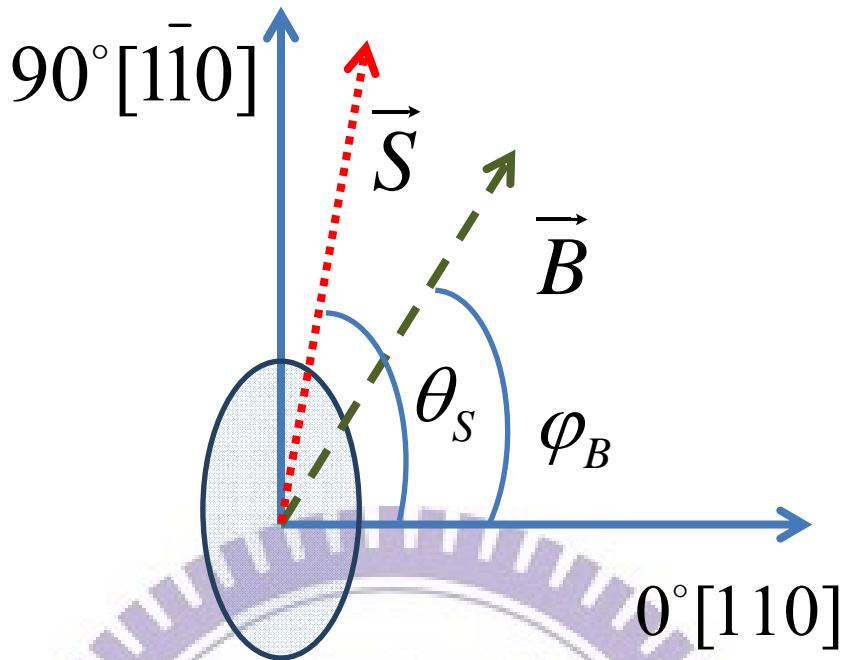
【圖 4-14】模擬外加磁場在 90 度，75 度 以及 外加應力於 80 度輔助下，精細結構分裂及本徵軸隨磁場變化模擬圖。

第一種情況，外加磁場的方向沿著 90 度即  $[1\bar{1}0]$  方向。由上述推導可知其為精細結構分裂為交叉現象。同時本徵軸隨著磁場也發生了相位反轉的情況，在 FSS 為 0 的時候，相位直接由 90 度轉成 0 度。

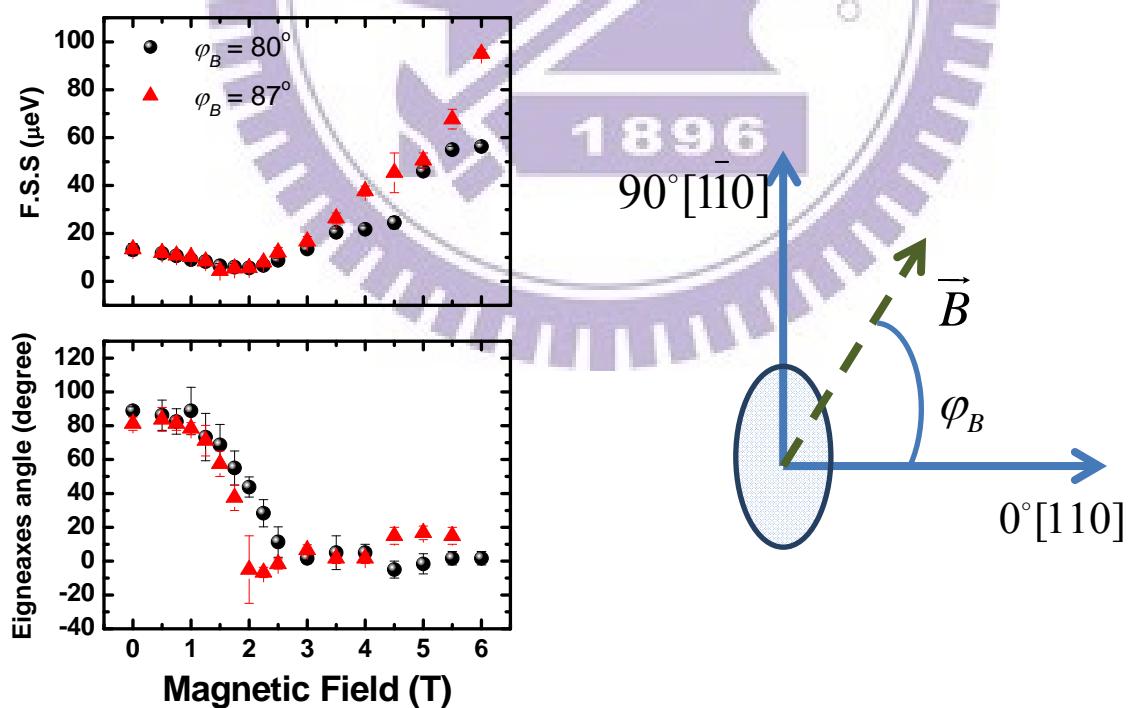
第二種情況，外加磁場的方向沿著 75 度方向。其精細結構分裂為反交叉現象。本徵軸在 FSS 隨磁場加大由負值轉變成正值的過程中也同樣發生相位反轉現象，反轉的速率相對第一種較緩慢。

第三種情況為在第二種情況基礎上，外加應力在 80 度來對其本徵軸進行修正。我們可以看到其本徵軸在轉向的過程中，變化的速率相對第二種情況較急劇，且 FSS 的最小值也較來得小。因此，藉由外加應力對本徵軸的修正，可使其反交叉的程度變小。

實驗中，我們定義  $[110]$ 、 $[1\bar{1}0]$  分別為 0 度以及 90 度， $\vec{B}$  和  $\vec{S}$  分別是外加磁場以及外加應變方向， $\varphi_B$  和  $\theta_s$  分別為其相對  $[110]$  之夾角，如【圖 4-15】。我們針對三種情形下進行實驗。首先，外加磁場  $\vec{B}$  約在 80 度的方向 ( $\varphi_B = 80^\circ$ )。而後，外加磁場方向  $\vec{B}$  約在 87 度方向 ( $\varphi_B = 87^\circ$ )。我們對以上兩種外加磁場在不同方向，比較其精細結構分裂隨磁場變化之最小值以及本徵軸隨磁場變化的急劇程度。如【圖 4-16】。



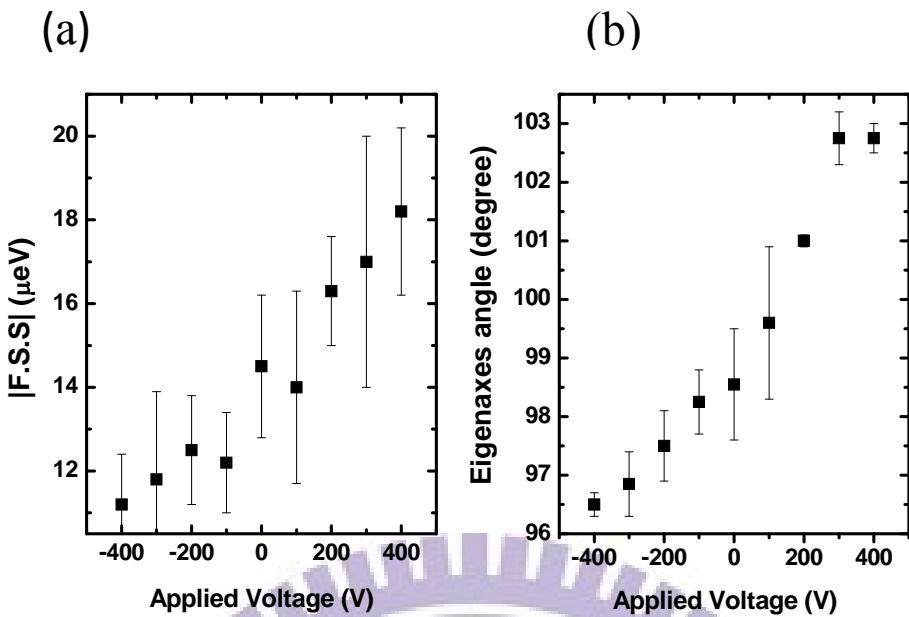
【圖 4-15】實驗時晶軸及外加水平磁場和應力方向表示圖。



【圖 4-16】 $\varphi_B = 80^\circ$  與  $\varphi_B = 87^\circ$  FSS 及本徵軸隨磁場變化比較圖。

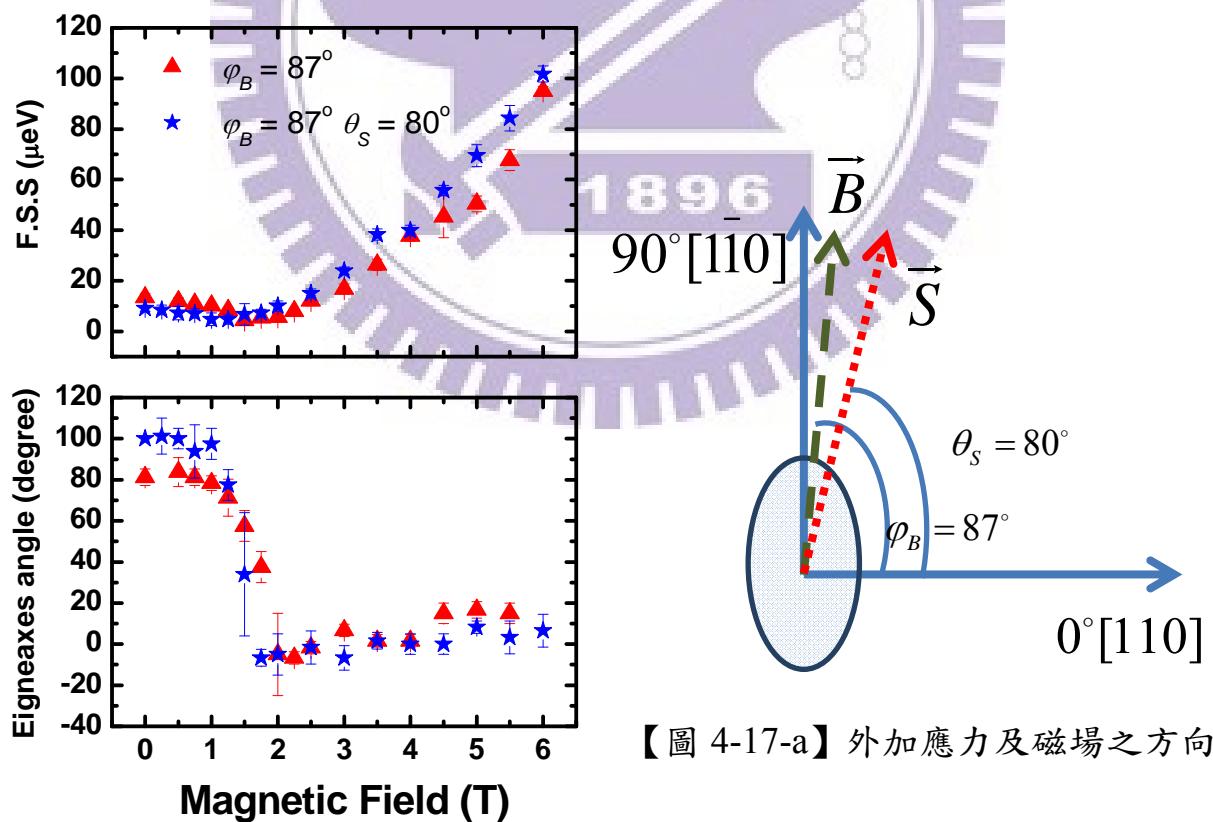
兩者之精細結構分裂皆在磁場約  $1.5\text{T}$  時，有一最小值，之後則開始變大。由於在系統解析的關係，在精細結構分裂較小時( $\text{FSS} < 10\mu\text{ev}$ )，會有判斷上的困難以及誤差。故我們可從本徵軸隨磁場變化的劇烈程度來判斷。在  $\varphi_B = 87^\circ$  下，本徵軸隨磁場變化較  $\varphi_B = 80^\circ$  來得急劇，由此代表反交叉的程度較小。與模擬中外加磁場方向偏離本徵軸，本徵軸隨磁場變化相符合。

接著，盡管外加磁場較靠近其本徵軸時，兩明激子能態之反交叉現象有被改善。可是卻還是存在有進一步改善的空間。於是我們藉由外加偏壓而產生外加應變與量子點上，嘗試對其本徵軸做一個修正。實驗中我們外加應力方向  $\vec{S}$  於約  $80$  度的方向( $\theta_s = 80^\circ$ )，如【圖 4-18-a】。我們將外加正偏壓(壓縮應力)/負偏壓(伸張應力)，本徵軸將會被修正，精細結構分裂也會有所改變，如【圖 4-17-a】，【圖 4-17-b】。精細結構分裂會絕對值隨著正偏壓而增加，負偏壓而減小。本徵軸隨正偏壓而往大角度的方向旋轉，負偏壓往低角度方向旋轉。故此，我們將外加負偏壓(伸張應力)，並改變磁場，觀察其精細結構分裂及本徵軸旋轉之快慢程度與未外加應力的情況作比較，如【圖 4-18】。



【圖 4-17-a】外加偏壓下 FSS 隨電壓之變化圖。

【圖 4-17-b】外加偏壓下本徵軸隨電壓之變化圖。



【圖 4-17-a】外加應力及磁場之方向示意圖

【圖 4-18】 $\varphi_B = 87^\circ$  有無應力下 FSS 及本徵軸隨磁場變化比較圖。

初始的精細結構分裂由於外加應變的影響變小，因而精細結構分裂由負值轉成正值所發生的磁場位置發生在較低磁場的時候；約在 1T 左右。精細結構分裂隨磁場調變之最小值也較未加應力時候來得小。本徵軸隨磁場變化的程度更為急劇，表示其兩明激子能階反交叉的程度更小即更接近交叉的情況。以上皆合乎模擬所表示的情況，說明同時外加應力對本徵軸修正對反交叉之程度確實有一定的改善；更進一步的說明同時外加應力及水平磁場調控精細結構分裂有可能將激子能態調控回簡併態。



## 第五章 結論

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、精細結構分裂以及本徵軸造成影響。

利用外加水平磁場，精細結構分裂可由負值隨磁場加大而被削減卻意外發現有反交叉現象存在。利用將一階微擾理論將賽曼效應視為微擾，將激子包含子-電洞交換作用、與價電帶混合效應及塞曼效應的漢米爾頓進行簡化，從而找出反交叉的原因以及造成交叉的條件。模擬指出了電洞  $g$  因子中三次方項，為導致反交叉現象的重要元素以及反交叉程度的大小可由本徵軸隨磁場變化的程度來判斷。同時，外加應力對量子點本徵軸的修正，可以改善其兩明激子能態反交叉的程度。實驗顯示出，在外加磁場方向更貼近其本徵軸的情況下以及在外加應力的幫助下，反交叉程度有被改善。說明了在同時外加應力的協助下以及水平磁場的調控，激子的精細結構分裂是有可能被消除的。

## 附錄

本論文中所模擬之使用參數如下表所示

$\Delta_1$	$\Delta_0$	$\delta_0$	$\rho$	$\Delta_{lh}$	$\frac{I_{lh}}{I_{hh}}$	$g_{h1}$	$g_{h3}$	$g_e$
0.055meV	0meV	0.17meV	-12.5meV	40meV	0.33	-0.628	0.11	-0.65

【表 3-2】本文模擬中所使用各物理量之參數表

$\Delta_1$  為兩明激子能量差

$\Delta_0$  為兩暗激子能量差

$\delta_0$  為明激子至暗激子能量差

$\rho$  為應變耦合強度

$\Delta_{lh}$  為輕電洞至重電洞能量差

$\frac{I_{lh}}{I_{hh}}$  為輕電洞與重電洞能之重疊程度

$g_{h1}$  Luttinger 參數

$g_{h3}$  Luttinger 參數

$g_e$  電子之 g 因子

## 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.Landinm,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 (1922)
- [9] W.H. Chang, W.Y.Chen, H.S. Chang, T.M. Hsu,T.P Hsieh and J.I. Chyi, *Phys. Rev. Lett.* **96**,117401 (2006)
- [10] C.H.Linet *et al.*, *Phys.Rev.B* **83**,075317 (2011)
- [11] J.D.Plumhof *et al.*, *Phys.Rev.B* **83**,121302 (2011)
- [12] A. J. Bennett *et al.* *NaturePhys* **6**,947 (2010)
- [13] S.L Chuang “Physics of Optoelectronic Devices” 2<sup>nd</sup> edition Wiley (2008)
- [14] W.Sheng ,S-J Cheng and P.Haerylack *Phys.Rev.B* **71**, 035316 (2005)
- [15] M.Bayer *et al.*, *Phys.Rev.B* **65** 195315 (2002)
- [16] H.W van Kasteren *et al.*, *Phys.Rev.B* **41**,5283 (1990)
- [17] E.Blackwood *et al*, *Phys.Rev.B* **50**,14246 (1994)
- [18] L'eger Y. *et al.*, *Phys.Rev.B* **76**,045331 (2007)
- [19] 吳朗,“電子陶瓷壓電” (1994)
- [20] Andreas Herklotz, Johannes D. Plumhof, Armando Rastelli  
Oliver G.Schmidt, Ludwig Schultz, Kathrin Dorr, *J. Appl. Phys.* **108**,094101(2010).
- [21] M.Shanthi, L.C Lim, K.K Rajan and J.Jin *Appl.Phys.Lett* **92**,142906 (2008)