

半导体 InAs 量子点单光子发射器件

牛智川[†] 孙宝权^{††} 窦秀明 熊永华 王海莉 倪海桥 李树深 夏建白

(中国科学院半导体研究所 半导体超晶格国家重点实验室 北京 100083)

摘要 文章概述了量子点单光子源的研究现状,综述了微腔量子点耦合单光子发射器件制备中关键的低密度 InAs 量子点外延技术,单量子点单光子发射二阶关联函数 HBT 检测方法,分布布拉格反馈微腔结构的制备以及实现液氮温度下电驱动微腔量子点单光子发射器件等研究结果。

关键词 单光子,量子点,二阶关联函数,微腔

Semiconductor InAs quantum dot single-photon emission devices

NIU Zhi-Chuan[†] SUN Bao-Quan^{††} DOU Xiu-Ming XIONG Yong-Hua

WANG Hai-Li NI Hai-Qiao LI Shu-Shen XIA Jian-Bai

(National Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract Recent progress in the development of single-photon source devices is reviewed. The epitaxial growth of low density InAs self-assembled quantum dots, Hanbury Brown and Twiss measurements of the second order correlation functions of the luminescence from InAs single quantum dots, and the fabrication of distributed feedback Bragg microcavity structures are discussed. Electrically driven single-photon emission devices operated at liquid nitrogen temperatures have been successfully realized.

Keywords single photon, quantum dot, second order correlation function, microcavity

1 引言

单光子源是可以稳定地发出单个光子流(也就是在一定的时间间隔内只包括一个光子)的“反聚束”源.换句话说,单光子发射是指每次只产生一个光子的过程,是对应于单个二能级体系电子空穴对的辐射跃迁、体现辐射光反聚束效应的过程.从物理机制来讲,具备单个二能级的材料或结构都可以产生单光子.其具体过程主要是:对单个二能级体系周期地光泵或电注入激发产生电子空穴对,经复合而产生光子,然后需要一定的时间再次激发,产生下一次光子,两次光子发射间有一个死时间,这样每次产生的发射为单光子过程.但从技术实现来讲,要实现单个光子的可控发射难度很大,要求发射的光束中两个及两个以上光子的几率可以小到忽略不计.理想的单光子器件就是在一定的时间间隔内有,而且仅有一个光子的规则光子流.

单光子源是实现单光子量子比特、光量子密码 (quantum cryptography) 和量子密钥传输 (quantum key distribution, QKD)、光量子计算和量子网络 (quantum internet) 的关键器件.此外在极弱信号测试 (极限灵敏度直接受限于光噪音的干扰,单光子源将对这类测试发挥重要作用)、随机数的产生等等都需要单光子源.可以预计,有了高性能单光子源将可能实现单光子量子态的操纵,从而构建新结构、新功能的光量子信息处理器件.开展单光子发射器件的研究,实现单光子可控发射具有十分重要的科学意义.

单光子检测的标准方法被称为 HBT 测试法,是

* 国家自然科学基金(批准号:10734060,90921015,60676054)、国家重点基础研究发展计划(批准号:2006CB921504,2007CB921904)资助项目

2010-07-15 收到

[†] 通讯联系人. Email: zcniu@semi.ac.cn

^{††} 通讯联系人. Email: bqsun@semi.ac.cn

1956年由 Hanbury Brown 和 Twiss^[1]提出的通过双光电探测器光谱系统对光场强度的关联特性进行检测的方法. Born 和 Wolf 在 1980 年采用 HBT 法研究了激光器输出光的二阶关联函数特性,通过将光场强度压缩到一个光子的极限情形,实现了从经典光学的场振幅强度测量到量子光学单光子态测量的跨越^[2]. 然而上述实验的单光子光源是采用光强衰减的方法来模拟的,还不是真正的单光子源. 真正的单光子源必须解决单光子发射的可控操作. 1974 年, Clauser 曾经提出采用 Ca 原子级联跃迁的弱光束效应获得单光子的方案^[3]. 随后,单分子、离子、有机分子、缺陷中心、半导体纳米晶体和异质结等结构都被用于研究单光子发射源^[4-8]. 不同材料体系和结构虽然都满足可以产生单光子源的要求,但其性能各异限制了其应用场合. 如单分子、色心、半导体纳米晶粒(如金刚石结构)单光子源,适合于光子数可控、衰减光测试,或者量子密码应用等. 而孤立原子、真空中离子或分子以及量子点等,可以产生相干单光子,适合于量子计算应用,其单光子源必须严格隔离,以避免干扰. 目前无论采用何种结构,单光子源要达到像激光器那样易用可靠的程度还面临很多难题.

目前,最接近实用和易用的单光子发射器件是基于半导体量子点的单光子器件. 量子点是三维受限的“类原子”结构,具备明显的单个二能级体系特征,是近年来单光子、自旋量子态物理研究的理想固态结构^[9,10],可以采用周期性光泵或电注入电子、空穴的方法来激发半导体量子点,以产生单光子. 这个方法的主要优势包括:可以高速发射谱线宽度非常窄的单光子脉冲,对量子通信非常有利;可以用光脉冲泵浦或电脉冲产生稳定的单光子流;采用二极管结构,易于光纤通信;可以利用现有成熟的半导体工艺,易于封装集成,实现高稳定长寿命;不存在光漂白和光闪烁问题;波长可以在较大范围内变化. 随着半导体纳米材料外延生长、制备工艺技术精度的不断提高,具有显著量子限制效应的量子点的实验制备技术已经发展到相当高的水平. 因此,半导体量子点单光子发射源已经成为目前最有希望率先获得实用化突破的固态量子信息器件.

除了单光子的产生机制外,单光子的可控发射也是实用化单光子器件的关键问题之一. 研究表明,利用微腔的 Purcell 效应可以有效地改善单光子发射可控性. 例如中性原子在一个精细加工的光学微腔中实现了单光子发射^[11]. 受激辐射过程在微腔耦合作用下,单光子发射体现出更高的效率和更好的

可控性^[12,13]. 此外,采用光子晶体微腔减少模式体积也会对实现固态强耦合非常有效. 在高耦合效率的微腔中,半导体束缚激子局域化的电子态将会表现为更接近原子的荧光特性. 因为高辐射率要求短的载流子寿命,微腔增强效应可以减小发射寿命至几十皮秒. 此外量子点和微腔耦合结构不仅是单光子发射器件的理想结构,也是其他量子信息研究,如非经典电磁场辐射激子波函数相干操纵,电子自旋和核自旋相互作用,紧凑型固态纠缠光子对器件等的主要体系之一.

总之,研制微腔量子点结构是实现单光子发射器件和其他量子信息物理研究的重要课题. 本文报道了基于半导体 InAs 量子点的单光子发射器件研究,突破了高质量稀疏密度 InAs 自组织量子点的生长技术^[14],建立了单量子点检测低温光荧光、单光子发射二阶关联函数 HBT 光谱检测技术,设计制备了 ALGaAs/GaAs 分布布拉格反馈平面微腔与 InAs 单量子点耦合结构的单光子发射器件,实现了液氮温度下电驱动单光子发射^[15,16].

2 低密度 InAs 量子点的分子束外延生长

对于量子点单光子源,首先面临的问题是如何隔离出单个量子点. 目前外延法制备量子点均采用自组织生长技术,这种方法生长的量子点无缺陷,具有高的发光效率,但在一般生长条件下,自组织量子点具有高密度特性(10^{10} — 10^{11} /cm²),隔离出单个量子点需要使用电子束曝光及刻蚀. 这种方法工艺难度较大,易引入结构损伤. 因此如何生长出低密度量子点是制备量子点单光子发射器件需要解决的难题之一.

我们通过优化生长温度、淀积量、生长速率等参数,研究了高质量低密度量子点的外延生长参数. 量子点样品使用了 VEECO Mod Gen II 固源分子束外延设备生长,衬底为半绝缘 GaAs (100),首先生长 $0.5\mu\text{m}$ 的 GaAs 缓冲层,然后生长 InAs 量子点,中间 GaAs 间隔层为 300nm,最后再生长一层同样尺寸的 InAs 量子点. 埋层量子点用于测试发光性质,而表面层的量子点用于形貌和密度等的测试. 原子力显微镜 AFM 测试系统为 Nanoscope-IIIa 型. 光荧光 PL 光谱激光源采用 632.8nm 的 He-Ne 激光器, Si-CCD 探测器用液氮冷却,微区 PL 谱测

试使用自行搭建的共聚焦显微测量系统。

我们首先利用分子束外延系统配置的反射式高能电子演示仪(RHEED),结合 AFM 测试结果,在固定生长速率为 0.005 单原子层(ML)/s 时,对不同生长温度下 InAs 成岛的临界淀积量(critical deposition amount)以及量子点密度的变化情况进行了观察统计,结果如图 1 所示.生长温度从 525℃ 至 555℃ 范围时,成岛临界量随温度升高而线性增加,当温度超过 555℃ 时,成岛临界淀积量迅速增大.这是较高温度下 In 解吸附变得严重的原因^[17,18].而从 InAs 量子点的密度随淀积温度的变化曲线可以看出,当温度超过 555℃ 时,量子点密度的变化减小,此时再继续升高生长温度,也不能降低量子点密度.

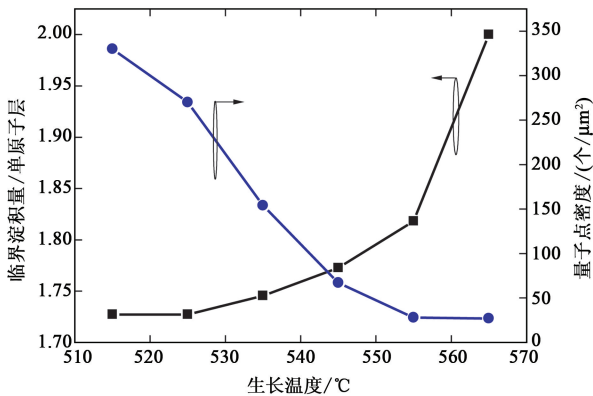


图 1 临界转变厚度和量子点密度随生长温度的变化

为了进一步明确典型生长温度 535℃ 和 555℃ 下 InAs 量子点形貌和密度的变化,采用 0.005ML/s 的生长速率,生长了 In 淀积量为 2.1ML 的 InAs 量子点,其 AFM 如图 2 所示.可以明显地看到,量子点的密度由 $1.7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 降至 $2.8 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$,而量子点尺寸随生长温度的升高而增大.

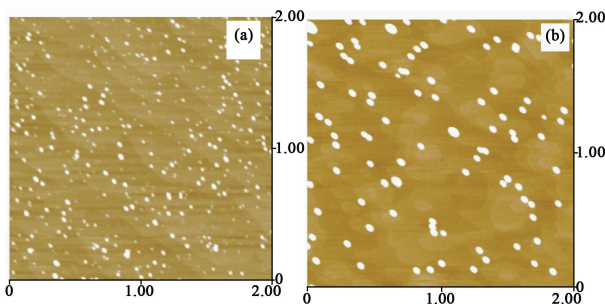


图 2 不同生长温度(a) 535℃ 和 (b) 555℃ 下 2.1ML 的 InAs 量子点 AFM 图像(横、纵坐标单位均为 μm)

为了进一步明确淀积量对量子点密度的影响,我们选择 535℃ 的生长温度时对比了淀积量为 2.25ML 和 2.35ML(每淀积 0.1ML 停顿 10s)InAs

量子点密度变化.其 AFM 测试结果如图 3 所示.可以看出,淀积量的增加使得量子点密度有所增加,但增大淀积量的量子点的均匀性似乎变差了.

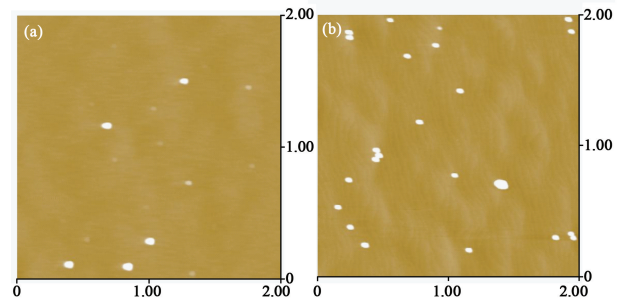


图 3 淀积量为(a) 2.25ML 和(b) 2.35ML 的 InAs 量子点的 AFM 图(横、纵坐标单位为 μm)

除了温度、淀积量以外,还需要明确生长速率对密度的影响.我们选择 535℃ 的生长温度,淀积量 2.1ML,对比了不同生长速率下量子点的密度变化.如图 4 所示:当生长速率从 0.1ML/s 降低为 0.001ML/s 时,量子点的密度从 $2.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 大幅度降低到 $5 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$,而量子点的横向尺寸从 40nm 增加到 65nm,高度由 4.3nm 增加到 7nm.其原因在于生长速率减小使得 In 吸附原子的迁移长度增加,为使表面应变和表面能最小,In 原子主要进入已成核的量子点中,而不是形成新的量子点,从而导致量子点密度的减小且尺寸增加.

从形貌均匀性来看,采用合适的温度和一定的淀积量下,低生长速率获得极低密度的量子点,结果是令人满意的.更重要的是需要检验这种低密度量子点的发光质量.我们测试了图 4(c)低密度量子点(系综)光荧光谱如图 5 所示.为了获得高的信噪比,需要采用目前暗计数和灵敏度最好的 Si 单光子探测器(SPCM-AQR-14).为了 Si 探测器适应响应波段小于 1μm 的要求,我们研究了低密度量子点发光波长调整的原位退火技术.通过一系列实验,最终在 950℃ 下快速退火 30s 后,成功地使量子点发光波长蓝移了 270nm.图 5 为同一组样品在低温 10K 下 PL 谱测试结果.测试结果表明,量子点的发光质量很好.峰蓝移到了 Si 的探测器波段,从而为后续的测试奠定了基础.

3 单量子点显微光谱及二阶关联光谱测试

有了上述高质量的低密度量子点样品,使得我们可以采用普通的显微光谱,较为容易地测试到了来自单量子点的发光,从而避免了隔离、制备等复杂工艺

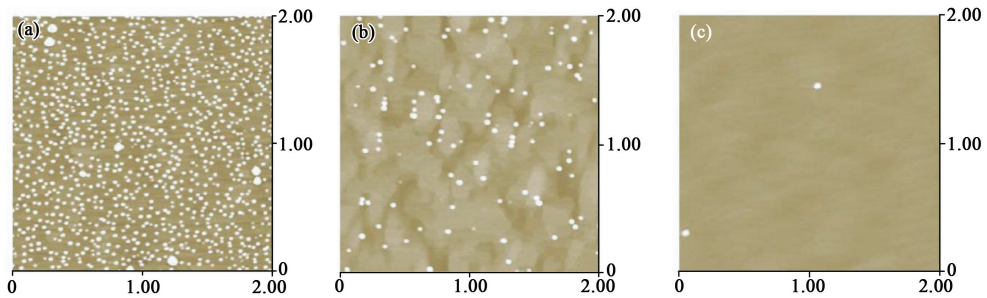


图4 厚度为 2.1ML 的 InAs 量子点的表面 AFM 图, 生长速率: (a) 0.1ML/s; (b) 0.005ML/s; (c) 0.001ML/s (横、纵坐标单位为 μm)

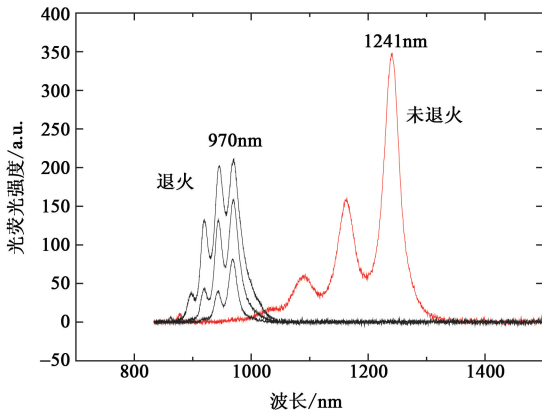


图5 高温快速退火与未退火量子点 PL 谱

的麻烦及其可能对量子点发光性质带来的不利影响。

显微 PL 谱测试得到的单量子点光谱的 PL 谱如图 6(a) 所示. 当功率为 3.6nW 时, 只有一条激子谱线 X; 当功率增加到 92nW 时, 在谱线 X 的高能侧出现了另一条谱线 XX. 图 6(b) 给出了谱线 X 和 XX 的光荧光积分强度与激发光功率的关系. 在对数坐标中, 根据线形拟合得到谱线 X 和 XX 的系数 n 分别为 1.0 和 1.8. 由此可以指认谱线 X 和 XX 分别对应量子点单激子和双激子发光.

研究量子点的单光子发射实际上是研究辐射光的粒子特性. 光粒子态的统计特性, 也就是一定光通量光束在一定时间间隔内光子数随机起伏的统计特性, 如激光光子服从泊松 (Poissonian) 统计规律. 光子数的统计特性通常采用二阶关联函数来测量, 归一化二阶关联函数的经典定义为光强自关联: $g^{(2)}(\tau) = \{I(t) I(t+\tau)\} / \{I(t)\}^2$, 表示在时刻 t 观察到一个光子后在 $t+\tau$ 时刻观察到另一个光子的几率. 光子数的统计分布分为超泊松、泊松、亚泊松、以及光子数态等几种情形. 泊松光是指光子的时间间隔随机, $g^{(2)}(\tau)$ 对所有的 τ 值都相同, 与 $t=0$ 时刻是否探测到光子无关. 而超泊松光是聚束光, 光子出现不是随机的, 如果在 $t=0$ 时刻探测到一个光子, 则在短的时间间隔内探测到另一个光子的几率要比在长的时间间

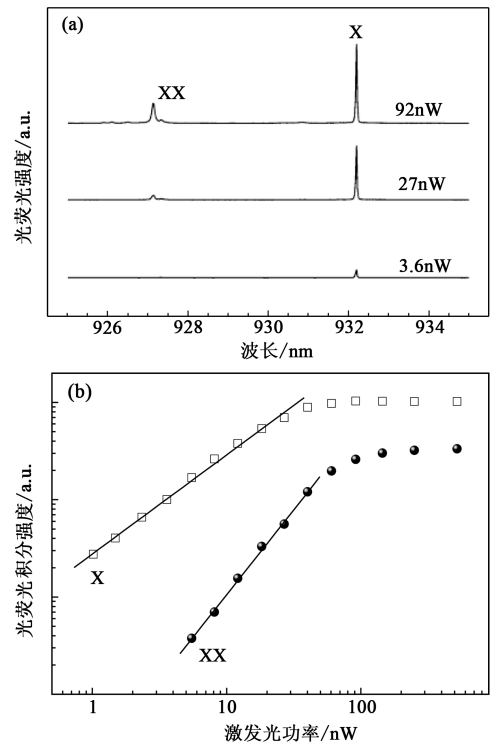


图6 (a) 10 K 温度下不同激光激发功率单 InAs 量子点显微光荧光谱; (b) 光荧光积分强度随激发光功率的变化 (对数坐标)

隔内的大, $g^{(2)}(0) > g^{(2)}(\infty)$. 亚泊松光为反聚束光, 光子间隔有规则, 且光子数随 τ 值增大而增大, $g^{(2)}(0) < g^{(2)}(\tau)$, $g^{(2)}(0) < 1$. 光子数态是亚泊松光的极限状态, 其光子的间距完全规则, $g^{(2)}(\tau)$ 包含一系列规则间距 Dirac delta 函数, $g^{(2)}(0) = 0$.

归一化二阶关联函数 $g^{(2)}(\tau)$ 可以通过 HBT 干涉光谱系统测量. 如果是纯粹的反聚束光, 则在 $\tau=0$ 时, 出现反聚束凹陷 (antibunching dip), 表明同时探测到两个光子的几率要比在较大时间间隔内探测到的几率小得多. 统计结论认为: 理想的单个光子发射器产生的凹陷归一值为零, 理想的双光子发射器产生的凹陷归一值为 0.5, 而理想的 n 个光子发射器产生凹陷的归一值为 $1 - (1/n)$. 一个二能级系统的单量子点在发射一个光子后, 需要等待一段时间后才能再次发射光子, 形

成级联发射,这样产生的光子流为亚泊松分布,即发射的光子具有反聚束效应。

根据上面的讨论,我们对自组织生长的 InAs 单量子点的辐射光采用二阶关联函数 HBT 测试系统进行分析,以判断其是否为单光子。在单量子点显微荧光光谱图 2 的测试基础上,我们选取了其中的单激子谱线 X 做了光子的二阶关联测量,得到了图 7 所示的结果。图 7 下部是在 8K 温度下用弱激光脉冲激发单 InAs 量子点的单激子自关联光谱。图 7 的上部是衰减的激光光源自关联谱。激光源到探测器 APD 记数为 10000cps,光源频率为 82MHz。如图 7 所示, $t=0$ 零时,荧光峰受到抑制,出现反聚束效应,说明量子点单激子的发光为非经典的亚泊松光。用零延时刻荧光峰面积除以其他峰面积的平均值,就得到零延时刻二阶关联函数 $g^{(2)}(0)$ 的数值,其中衰减激光光源为 1.08,而量子点单激子发光为 0.23。

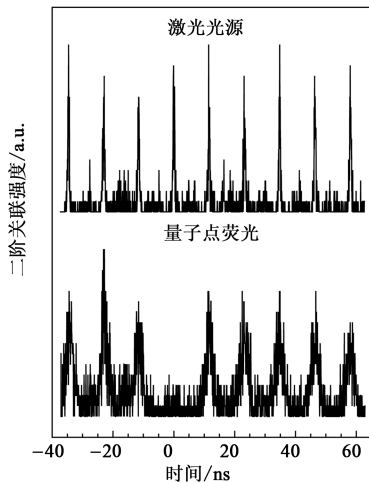


图 7 用 HBT 干涉仪测得的衰减激光和量子点单激子发光的二阶关联函数谱

理想情况下,激光的 $g^{(2)}(0)$ 数值应该为 1,造成偏离的原因是由于探测器存在噪声,而 InAs 量子点单激子辐射光子的 $g^{(2)}(0)$ 数值为 0.23,也偏离了理想值 0,其主要原因是由探测器的暗计数造成的。 $g^{(2)}(0)$ 数值为 0.23 的物理含义可以解释为:相对于同样平均光子数的泊松光源量子点多光子发射几率减小了 0.23 倍。

从图 7 的光谱中可以看到,荧光谱的信噪比较差,这是由于量子点发光效率还较低。所以提高发光效率非常重要,而温度也是影响发光效率的重要因素之一^[19-22]。当温度升高时,声子散射造成自组织量子点的荧光强度降低。但是为了实现单光子源的实用化,必需在液氮温度(77K)下实现较高效率的发光。目前最可行的方法就是把量子点置入光腔中。利用微腔的 Purcell 效应来减小量子点激子辐射寿命,增强发光效率,同时

利用微腔的收集增强效应获得可控的单光子发射。由于腔模中心波长和量子点发光波长随温度的变化不一致,因此采用弱耦合平面腔底部的分布布拉格反射(distributed Bragg reflector, DBR)平面腔来形成一侧的宽高反带,这样腔模易于在较大的波长范围内与量子点荧光波长匹配,起到增强量子点辐射荧光的作用。

4 微腔量子点结构单光子发射器件制备

根据上述分析,我们设计了微腔量子点单光子发射器件的外延结构,如表 1 所示。这里采用了半绝缘 GaAs(100)衬底,在 n 掺杂 GaAs 缓冲层上生长了 20 个周期的 n 型掺杂 GaAs/AlGaAs DBR, Al 的组分为 90%,反射率达到 99%,反射中心波长位于 980nm 附近。在 DBR 上生长了 2λ 腔长的 GaAs, InAs 量子点位于 GaAs 腔的波腹位置。InAs 量子点的生长条件与前面样品一样,具有低的面密度。覆盖层为 p 型掺杂的 GaAs 层。

表 1 微腔量子点单光子器件样品外延层结构

外延材料	外延层参数	循环周期
GaAs	15nm(掺杂 Be 浓度: $5 \times 10^{18}/\text{cm}^3$)	1
GaAs	30nm(掺杂 Be 浓度: $1 \times 10^{18}/\text{cm}^3$)	1
GaAs	226.2nm	1
InAs 量子点	2.1ML	1
GaAs	276.2nm	1
$\text{Al}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{As}$	80.69nm	1
GaAs	68.57nm(掺杂 Si 浓度: $2 \times 10^{18}/\text{cm}^3$)	} $\times 20$
$\text{Al}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{As}$	80.69nm(掺杂 Si 浓度: $2 \times 10^{18}/\text{cm}^3$)	
GaAs 缓冲层	300nm(掺杂 Si 浓度: $2 \times 10^{18}/\text{cm}^3$)	1
GaAs(100)半绝缘衬底		

电驱动 PIN 二极管单光子发射器件工艺结构如图 8 所示。

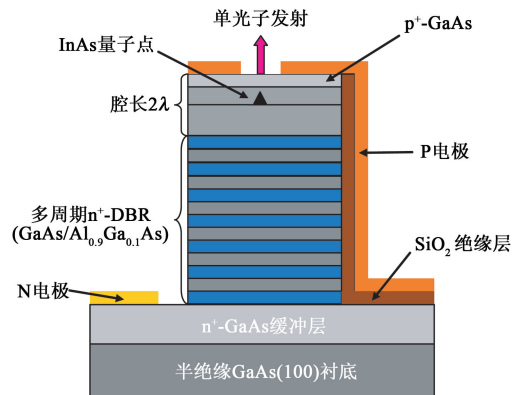


图 8 微腔量子点单光子发射器件结构

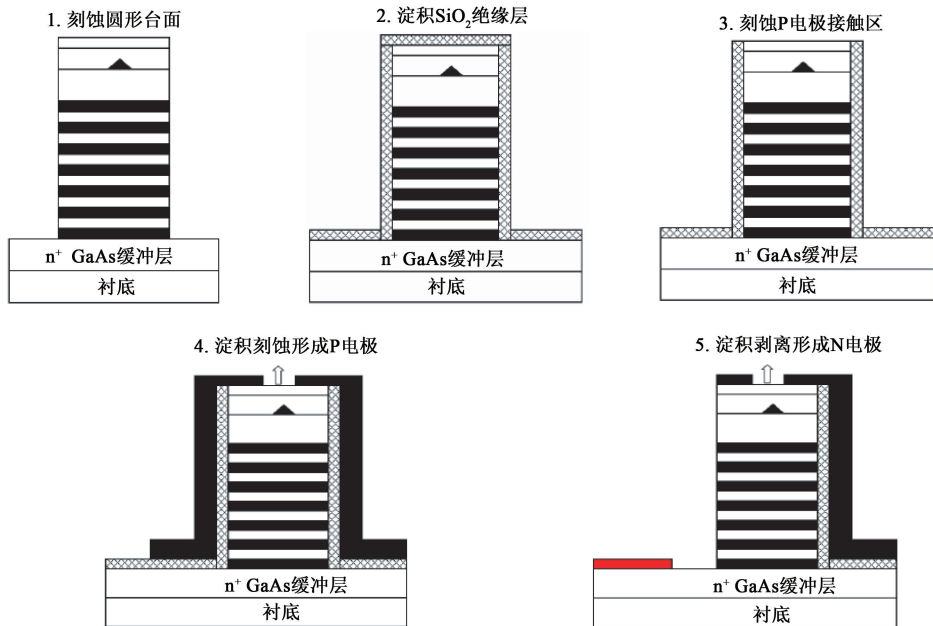
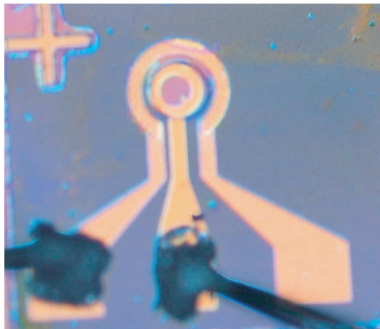


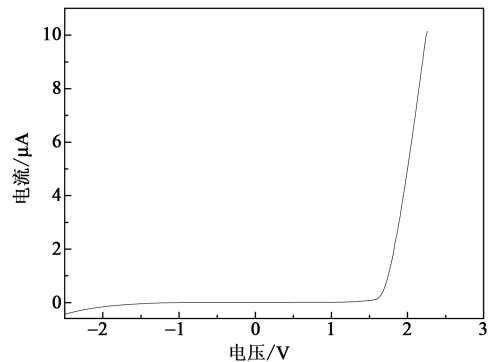
图9 单光子发射器件制备工艺流程

其制备工艺流程如图9所示:(1) 首先用有机溶剂 CCl_4 、三氯乙烯和丙酮清洗外延样品;(2) 光刻圆台,用腐蚀液腐蚀至N电极层;(3) 用PECVD淀积 300nm 绝缘 SiO_2 ;(4) 在N电极层刻出N电极区后去掉N电极区 SiO_2 ;(5) 在P电极圆形台面刻出P电极接触区后去掉P电极接触区 SiO_2 ;(6) 淀积 Cr/Au 合金构成P型电极层;(7) 刻出P电极接触区;(8) 制备N电极接触层. 淀积 $\text{Au}/\text{Ge}/\text{Ni}$ 合金形成N电极层,利用超声波剥离去掉非N电极接触区的 $\text{Au}/\text{Ge}/\text{Ni}$,形成N电极接触区;(9) 固化N电极 $\text{Au}/\text{Ge}/\text{Ni}$ 合金;(10) 衬底减薄后解理压焊. 最终形成的PIN器件结构如图10所示.

图10 器件顶视显微镜照片. 中心圆形区域为出光孔直径约 $44\mu\text{m}$. 内侧环为P电极,外侧半环为N电极

首先测试了器件的 $I-V$ 特性曲线,如图11所示. 开启电压为 1.6V , 电流强度在 mA 量级. 反射谱和光荧光谱如图12所示. DBR微腔腔模中心处于 972.5nm , 高反带中心 955nm . 微区 PL 谱显示量

子点光荧光波长为 974nm , 峰值半宽为 $400\mu\text{eV}$. 各项指标优良,满足器件的设计要求.

图11 PIN器件的 $I-V$ 特性曲线

5 微腔量子点耦合结构单光子发射二阶关联函数的变温特性测试

对上述的下DBR微腔 InAs 量子点样品做了不同温度下的二阶关联函数测试,结果如图13所示. 图13(a)为脉冲光激发下当温度为 5K , 30K , 60K 和 80K 时的发光谱. APD的光子记数率分别为 18000 , 16000 , 11000 和 8000cps . 与图8没有DBR的单量子点的HBT谱相比,由于底部DBR的高反作用,APD的光子记数率明显增加. 可以看到, 80K 温度以下时,二阶关联函数的零时间延迟峰都受到抑制,这是明显的反聚束效应. 通过计算得到 5K , 30K , 60K 和 80K 的 $g^{(2)}(0)$ 值分别为 0.31 , 0.359 ,

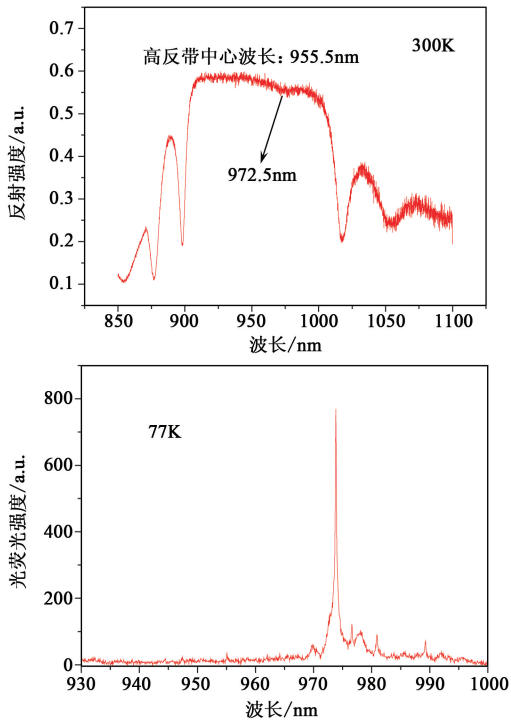


图 12 微腔反射谱及量子点光荧光谱

0.361, 0.42, 均小于 0.5, 均为单光子发射. 5K 温度下比理想值 0 高的原因可能是双激子发射造成的, 由于光谱过滤不够完全, 双激子光子也可能被 HBT 关联仪探测到, 从而在 $t=0$ 时引起计数. 还有 APD 探测器的暗计数也增加了随机计数. 温度为 60K 时和 30K 时的 $g^{(2)}(0)$ 值几乎相等, 这是因为随着温

度的提高, 双激子发射逐渐消失, 而背景发光噪声的影响逐步增强. 当温度为 80K 时, 背景发光的影响已经很明显了. 目前还不太清楚背景发光的机制, 但背景发光造成的零时间延迟的关联记数值可以由 $g_B^{(2)}(0) = 1 - S/(S+B)$ 公式计算^[22]. 其中 S 为激子发光信号, B 为背景发光. 80K 下, 显微光致发光谱得到单激子谱线的信噪比 S/B 约为 3.38, 代入上面的公式, 可以得到 $g_B^{(2)}(0)$ 值为 0.40, 与测量值符合得很好. 因此, 如果忽略掉背景发光, $g^{(2)}(0)$ 值接近于理想的零, 这意味着在温度 80K 时可以获得完美的单光子发射.

与脉冲激发相比, 连续光激发二阶关联函数的测量难以得到好的信噪比, 这是因为它需要更高的光子计数率. 在目前已有的报道中, 连续激发 InAs 量子点单光子发射的温度都没有超过 50K. 我们进行了 5K 到 80K 连续激发单 InAs 量子点发光二阶关联测量, 结果如图 13(b) 所示. 5K, 30K, 60K 和 80K 下, APD 光子计数率分别为 27000, 45000, 50000 和 18000cps, 对应的收集时间分别为 90, 60, 65, 120 分钟. 可以看到, 4 个温度下的二阶关联函数在零时延迟都出现了反聚束凹陷, $g^{(2)}(0)$ 的值都小于 0.5, 证明是连续发射的单光子. 二阶关联函数谱有大的噪声可能是 APD 的暗计数噪声引起的.

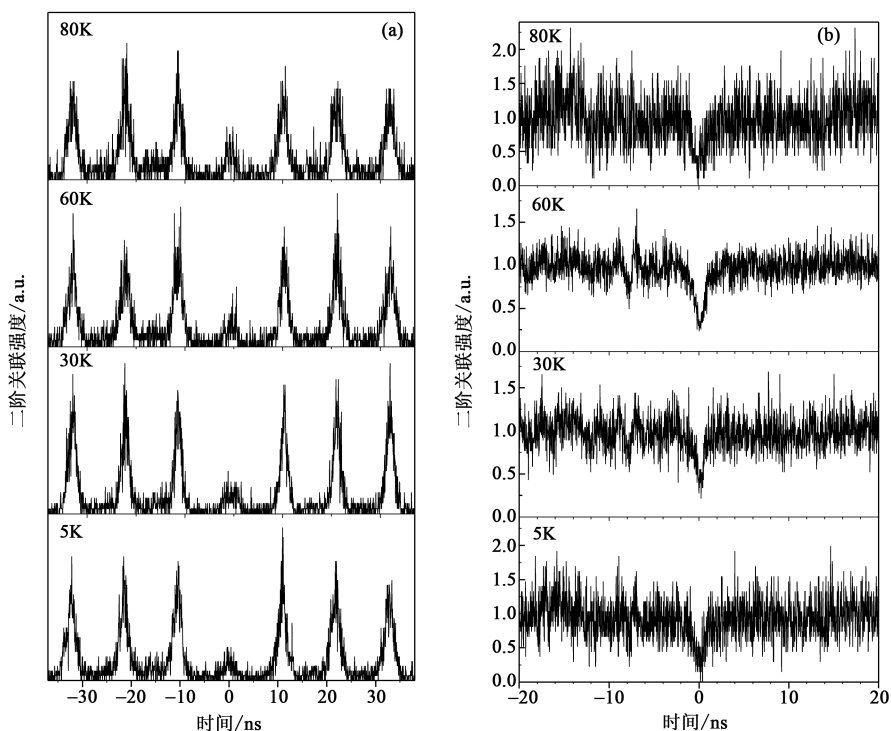


图 13 温度从 5K 到 80K 时, 在(a)脉冲光激发和(b)连续光激发下, DBR 微腔单 InAs 量子点光荧光二阶关联函数

6 单光子发射 PIN 二极管器件测试研究

对微腔量子点单光子发射 PIN 二极管器件进行了电驱动下单光子发射性能的测试. 首先采用直流电驱动, 其二阶关联函数的测试结果如图 14 所示. 测试温度为液氮温度, 直流偏压为 2.8V. 其电荧光的发光峰位于 1283.8meV. 在零声子线的周围, 可以观察到声子散射造成的声学声子伴线. 通过洛伦兹拟合, 得到它们的半高宽分别为 0.238meV 和 2.10meV. 对电荧光做了二阶关联测量, 结果如图 14(b) 所示. 可以观察到在零延时有明显的反聚束凹陷, 说明为单光子发射. 用表达式 $a - b \exp(-|t|/c)$ 来拟合实验得到的二阶关联函数曲线, 其中 $(a-b)/a$ 和 c 分别代表零时刻的二阶关联函数值 $g^{(2)}(0)$ 和激子复合发光寿命. 通过拟合, 得到 $a = 32.9 \pm 0.15$, $b = 22.9 \pm 1.6$, $c = 0.82 \pm 0.08\text{ns}$, 所以 $g^{(2)}(0) = 0.30$, 这个值比理想值 0 要大得多, 主要有 3 个方面原因: 首先是 HBT 测试系统有限的时间响应, 其次是 APD 的暗计数, 最后是来自背景和相邻发光噪声. 由于 HBT 响应时间有限, 实验测出的 $g^{(2)}(t)$ 实际上是二阶关联函数和仪器响应函数的卷积, 因此, 实验 $g^{(2)}(0)$ 的值比实际值要大. 而探测器暗计数和噪声发光在零时刻引起的关联记数分别定义为 $g_D^{(2)}(0)$ 和 $g_B^{(2)}(0)$, 它们的值同样可以用表达式 $1 - (S/S+B)^2$ 来计算. 通常探测器暗计数约为 120cps, 比电荧光记数小两个数量级, 所以 $g_D^{(2)}(0)$ 的影响可以忽略不计. 从图 14(a) 的电荧光谱可以得到其信噪比为 25, $g_B^{(2)}(0) = 0.08$, 这个值比 0.30 小得多. 综合来看, HBT 仪器响应时间有限是造成 $g^{(2)}(0)$ 偏大的主要原因.

实际应用中单光子发射速率的规则化非常重要, 这可以通过采用脉冲激发条件实现. 采用频率为 100MHz、脉宽为 1ns、幅度为 2.2V 的电脉冲, 叠加到 2.0V 直流电压上, 来驱动单光子发射二极管器件. 图 15(a) 所示为脉冲电荧光谱, 其信噪比为 18. 从二阶关联谱图 15(b) 可以观察到反聚束效应. 计算得到 $g^{(2)}(0) = 0.45$, 实现了单光子发光. 我们认为, 脉冲电激发下 $g^{(2)}(0)$ 比理想值大的主要原因是, 电脉冲宽度大于激子的复合发光寿命, 在一个电脉冲激发下, 量子点多次发射光子, 必然产生零延迟时二阶关联函数的记数. 这一点已经用较低频率 (50MHz)、较宽脉宽 (10ns) 的电脉冲激发二极管的

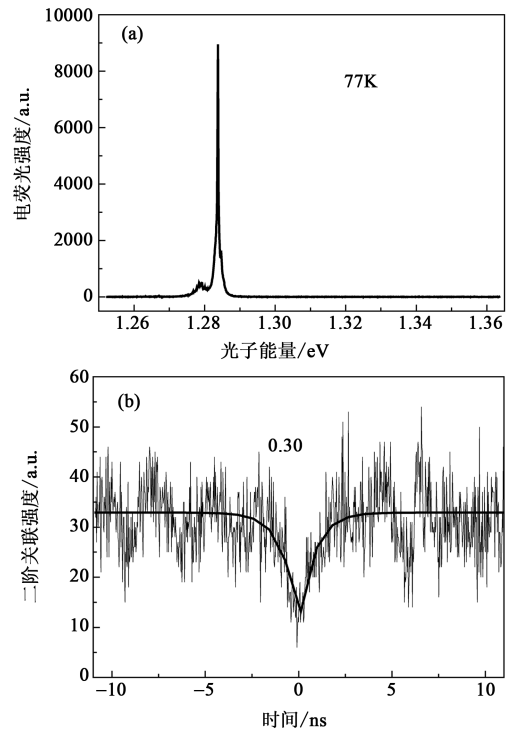


图 14 液氮温度下直流电驱动时得到的 (a) 单光子发射电荧光谱和 (b) 二阶关联函数

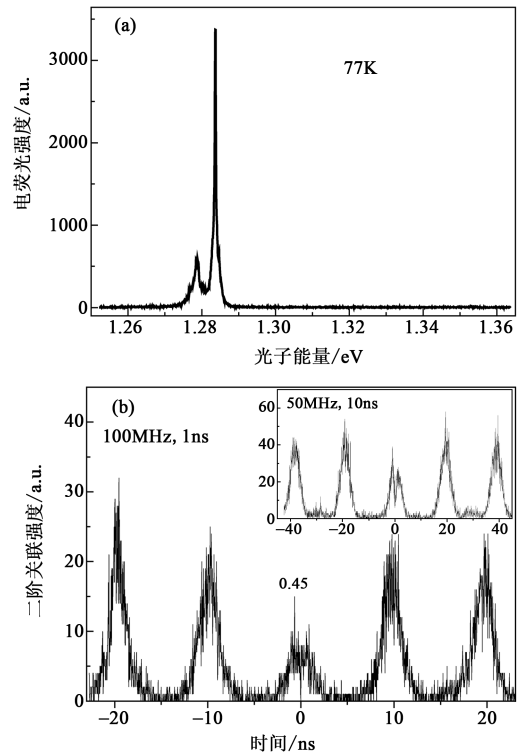


图 15 脉冲电 (频率 100MHz, 脉宽 1ns) 激发下得到的 (a) 电荧光谱和 (b) 二阶关联函数. 插图为脉冲电 (频率 50MHz, 脉宽 10ns) 激发电荧光二阶关联函数

二阶关联函数测试结果 (图 15(b) 的插图) 证实: $g^{(2)}(0) = 0.69$. 在零延迟关联峰上, 也观察到反聚束凹陷. 说明在较宽电脉冲激发下, 量子点被激发多

次发光. 因此判定, 采用脉冲电驱动单量子点时, 为降低多光子发射几率, 需要使电脉冲宽度小于量子点激子复合发光寿命. 为验证这个结论, 我们通过用高频(82MHz)脉冲(脉宽 150fs)激光来激发量子点单光子发射 PIN 器件. 在脉冲光荧光的记数率和脉冲电荧光记数率基本相等(3000cps)的条件下, 得到了其液氮温度下的二阶关联函数, 如图 16 所示. 虽然脉冲光荧光的信噪比较低, 仅为 12, 但其 $g^{(2)}(0)$ 值降低到了 0.24, 充分说明较短脉宽的激光脉冲抑制了量子点发射光子的多次激发.

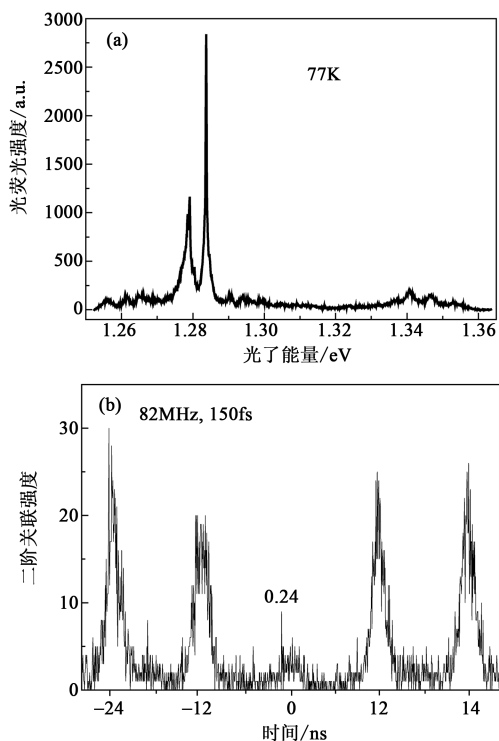


图 16 脉冲激光(频率 82MHz, 脉宽 150fs)激发下得到的(a)光荧光光谱和(b)二阶关联函数

7 结论

本文介绍了单光子源研究进展, 论述了自组织 InAs 量子点与微腔耦合单光子发射源的实验研究. 在获得了低密度、高发光质量的 InAs 量子点的基础上, 通过把量子点耦合到分布布拉格反射腔中, 实现了 80K 下连续和脉冲光泵浦单光子发射. 制备了微腔量子点 PIN 二极管单光子器件, 并成功地实

现了液氮温度下电驱动单光子发射. 分析了影响单光子发射性能的主要因素, 认为进一步提高微腔品质因子, 采用合适的泵浦源(电驱动或光泵浦)并优化器件的泵浦参数, 将可以提高单光子发射效率和进一步降低单光子发射二阶关联度.

参考文献

- [1] Hanbury Brown R, Twiss R. *Nature*, 1956, 178:1046
- [2] Born M, Wolf E. *Principles of Optics*. New York: Pergamon Press, 1980
- [3] Clauser J. *Phys. Rev. D*, 1974, 9: 853
- [4] Brunel C, Lounis B, Tamarat P *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1999, 83: 2722
- [5] Lounis B, Moerner W. *Nature*, 2000, 407: 491
- [6] Kim J, Benson O, Kan H *et al.* *Nature*, 1999, 397: 500
- [7] Kurtsiefer C, Mayer S, Zarda P *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2000, 85: 290
- [8] Brouri R, Beveratos A, Poizat J P *et al.* *Opt. Lett.* 2000, 25: 1294
- [9] Tartakovskii A, Wright T, Russell A *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2007, 98: 026806
- [10] Love A, Krizhanovskii D, Whittaker D *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2008, 101: 067404
- [11] Parkins A, Marte P, Zoller P *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1993, 71: 3095
- [12] Michler P, Kiraz A, Becher C *et al.* *Science*, 2000, 290: 2282
- [13] Santori C, Pelton M, Solomon G *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2001, 86: 1502
- [14] Huang S S, Niu Z C, Ni H Q *et al.* *J. Crystal Growth*, 2007, 301: 751
- [15] Dou X M, Chang X Y, Sun B Q *et al.* *Appl. Phys. Lett.*, 2008, 93: 101107
- [16] Xiong Y H, Niu Z C, Dou X M *et al.* *Chin. Phys. Lett.*, 2009, 26: 026802
- [17] Heyn C, Endler D, Zhang K *et al.* *J. Crystal Growth*, 2000, 210: 421
- [18] Liu P, Zhang Y W, Lu C. *Phys. Rev. B*, 2003, 68: 035402
- [19] Dou X M, Sun B Q, Chang X Y *et al.* *Chin. Phys. Lett.*, 2008, 25: 3231
- [20] Mirin R P, *Appl. Phys. Lett.*, 2004, 84: 1260
- [21] Kiraz A, Michler P, Becher C *et al.* *Appl. Phys. Lett.*, 2001, 78: 3932
- [22] Brouri R, Beveratos A, Poizat J *et al.* *Opt. Lett.*, 2000, 25: 1294