

# 基于光子统计测量的单分子判别<sup>\*</sup>

彭双艳<sup>1,2)</sup> 黄 涛<sup>1)</sup> 王晓波<sup>1)</sup> 邵军虎<sup>1)</sup> 肖连团<sup>1)</sup> 贾锁堂<sup>1)†</sup>

<sup>1)</sup> 量子光学与光量子器件国家重点实验室, 山西大学物理电子工程学院, 太原 030006)

<sup>2)</sup> 贵州毕节学院物理系, 毕节 551700)

(2005 年 1 月 4 日收到, 2005 年 4 月 7 日收到修改稿)

基于标准的 Hanbury-Brown-Twiss 探测方式下, 研究了具有 Poisson 统计背景的实际单分子光子源与理想双分子系统的光子统计特性, 通过比较分析二者在具有相同平均光子数  $\bar{n}$  时的 Mandel 参数, 研究给出一种利用双光子的统计概率  $P(2)$  判别单分子的方法为  $P(2) < \frac{1}{2}(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})$ . 同时研究了单分子光子源的信号/背景比对分析结果的影响.

关键词: 单分子, Mandel 参数, Poisson 分布, 信号/背景比

PACC: 3350, 3580B, 4250

## 1. 引 言

单分子光谱技术由于能够给出传统光谱技术系统平均不能获得的精细参量信息而被广泛地用于物理、化学、生物等领域的研究, 如用于研究光谱跃迁的动力学过程, 化学反应的动力学过程, 生物分子的结构<sup>[1-3]</sup>等. 高效的单分子光子源是量子计算、量子密码术和量子网络等形式的量子信息处理的重要前提条件<sup>[4,5]</sup>, 在实验中准确地辨别单分子系统具有重要的意义.

通常判别单分子系统的办法是基于标准的 Hanbury-Brown-Twiss (HBT) 测量结构, 利用开始-停止的方法测量光激发单分子的荧光光场的二阶相关函数  $g^2(\tau)^{[6-11]}$ , 通过观察在零延迟时是否存在反聚束效应来实现的. 即当  $g^2(0) = 0$  光源为理想单分子系统,  $g^2(0) \geq 0.5$  时光源为双分子光子源或多分子光子源. 然而在实验中由于背景光的影响,  $g^2(0)$  不可能为零<sup>[10]</sup>, 实际上只要满足  $g^2(0) < 0.5$ , 光子源就被认为是单分子系统. 这种方法的优点是便于直接观察和分析, 但这种复合光子统计测量的方法容易受到单分子布居于三重态 (OFF 态) 而产生的统计噪声的影响. 另外在测量过程中还需要使用时间幅

度转换器与多道分析仪等比较复杂的实验装置. Enderlein 等人<sup>[12]</sup>提出了基于荧光延迟测量, 利用最大概率法来判别单分子的方法, 这种方法适用于背景分子具有不同于单分子的荧光寿命, 辨别处于混合态的单分子系统, 分析与测量过程较复杂.

本文通过直接测量单事件 Mandel 参数  $Q^{[13]}$  给出一种判别单分子光子源的方法, 即在标准的 HBT 测量方式下, 通过测量光子源的光子统计概率  $P(n)$ ,  $n = 0, 1, 2$ , 由单光子、双光子的统计概率  $P(1)$ ,  $P(2)$  直接判别光子源是否是单分子光子源. 与采用  $g^2(0)$  的测量方法相比, 这种通过直接测量单事件  $Q$  参数的方法可以在短时间范围内完成测量, 而且不会受到统计噪声的影响.

## 2. 基于 HBT 光子统计概率及单分子光子源的 Mandel 参数

在 HBT 统计测量方式下, 用 50/50 的分束器把光子束分为两束, 并通过两个单光子探测器 (如雪崩光电二极管、光电倍增管) 对信号光进行探测. 由于探测器死区的影响<sup>[13,14]</sup>, 即每一个单光子探测器首先对第一个到达的光子有响应, 对后继死区时间 (数 10 纳秒或数百纳秒) 内到达的光子没有响应. 在测

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金 (批准号 60378004), 高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号 20040108002), 人事部留学人员科技活动择优资助项目和山西省留学基金资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail: tjia@sxu.edu.cn

量中如果取样时间  $T_s$ , 单光子探测器死区时间  $T_d$ , 激发脉冲周期  $T_m$  满足  $T_s < T_d < T_m$ , 那么在每个取样周期内每个单光子探测器最多只能探测到一个光子. 因此在 HBT 测量方式下只能探测到光子数  $n = 0, 1, 2$  的统计概率  $P(0)$ ,  $P(1)$  和  $P(2)$ . 而  $P(n, n > 2)$  的信息被丢失. 若用  $P^{so}$  表示光子源产生的光子统计概率,  $P^{in}$  为入射到探测器上的光子统计概率,  $P$  是探测器探测到的光子统计概率,  $\eta$  表示探测效率(包括光子在传输中信息的线性损耗, 以及探测器的量子效率), 则在 HBT 测量方式下, 这三个统计分布间的关系为<sup>[13]</sup>

$$P^{in}(n) = \sum_{m=n}^{\infty} \binom{m}{n} \eta^n (1-\eta)^{m-n} P^{so}(m), \quad (1)$$

$$P(0) = P^{in}(0), \quad (2)$$

$$P(1) = \sum_{n \geq 1} P^{in}(n) \frac{1}{2^{n-1}}, \quad (3)$$

$$P(2) = \sum_{n \geq 2} P^{in}(n) \left(1 - \frac{1}{2^{n-1}}\right), \quad (4)$$

每个激发脉冲周期内探测到的平均光子数为  $\bar{n} = P(1) + 2P(2)$ .

反映光子数涨落的一个重要参数是 Mandel 参数  $Q$ ,

$$Q \equiv \frac{(\Delta n)^2}{n} - 1 = \frac{n^2}{n} - \frac{n^2}{n} - 1,$$

$Q = 0$  为 Poisson 分布,  $Q > 0$ ,  $Q < 0$  分别为 Superpoisson 分布和 Subpoisson 分布. 在 HBT 的测量方式下, 单事件 Mandel 参数  $Q$  可以表示为<sup>[13]</sup>

$$Q = \frac{2P(2)}{\bar{n}} - \bar{n}.$$

下面分别讨论基于 HBT 测量方式下单分子光子源、Poisson 光源、实际的单分子光子源和理想双分子光子源的光子统计规律, 以及四种光子源具有相同平均光子数时的 Mandel 参数  $Q$  值.

### 2.1. 理想的单分子光子源

理想的单分子光子源 (SPS), 假设其探测效率为  $\eta_s$ , 光子的统计概率为

$$P_s(1) = \eta_s, \quad (5)$$

$$P_s(0) = 1 - \eta_s, \quad (6)$$

$$P_s(n, n \geq 2) = 0, \quad (7)$$

每个激发周期的平均光子数为

$$\bar{n}_s = \eta_s. \quad (8)$$

### 2.2. Poisson 光场

假设每个激发脉冲周期内背景光的平均光子数为  $\alpha$ , 由 Poisson 光的统计规律  $P(n) = \frac{\alpha^n}{n!} e^{-\alpha}$  ( $n = 0, 1, 2, \dots$ ), 可以计算相干 Poisson 光的光子概率分布为

$$P_C(0) = e^{-\alpha}, \quad (9)$$

$$P_C(1) = 2e^{-\alpha/2}(1 - e^{-\alpha/2}), \quad (10)$$

$$P_C(2) = (1 - e^{-\alpha/2})^2, \quad (11)$$

每个激发周期的平均光子数为

$$\bar{n}_C = 2(1 - e^{-\alpha/2}). \quad (12)$$

### 2.3. 实际的单分子光子源

实际的单分子光子源产生的光子是由理想的单分子光子源产生的信号光  $S = \bar{n}_s = \eta_s$  和满足 Poisson 统计分布的背景光  $B = \bar{n}_C = 2(1 - e^{-\alpha/2})$  构成<sup>[14-16]</sup>. 由 (5)–(12) 式可以算出实际单分子光子源产生的光子统计概率为

$$P_{RS}(0) = (1 - S)(1 - \frac{B}{2})^2, \quad (13)$$

$$P_{RS}(1) = (S + B - SB)(1 - \frac{B}{S}), \quad (14)$$

$$P_{RS}(2) = \frac{BS}{2} + \frac{B^2}{4} - \frac{B^2 S}{4}. \quad (15)$$

每个激发周期的平均光子数为

$$\bar{n}_{RS} = S + B - \frac{BS}{2}. \quad (16)$$

### 2.4. 理想双分子光子源

理想的双分子光子源产生的光子统计概率为 (假设其探测效率为  $\eta_D$ )

$$P_D(0) = (1 - \eta_D)^2, \quad (17)$$

$$P_D(1) = 2\eta_D - \frac{3}{2}\eta_D^2, \quad (18)$$

$$P_D(2) = \frac{1}{2}\eta_D^2. \quad (19)$$

每个激发周期的平均光子数为

$$\bar{n}_D = 2\eta_D - \frac{1}{2}\eta_D^2. \quad (20)$$

### 2.5. 四种光子源的 Mandel 参数

由 Mandel 参数的定义, 结合 (5)–(20) 式可以分别给出具有 Poisson 分布的相干光、理想单分子光子源、理想的双分子光子源、实际单分子光子源的

Mandel 参数  $Q$ .

$$Q_C = -\frac{1}{2}\bar{n}_C, \quad (21)$$

$$Q_S = -\bar{n}_S, \quad (22)$$

$$Q_D = \frac{2P_D(2)}{\bar{n}_D} - \bar{n}_D = \frac{(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}_D})^2}{\bar{n}_D} - \bar{n}_D, \quad (23)$$

$$Q_{RS} = \frac{2P_{RS}(2)}{\bar{n}_{RS}} - \bar{n}_{RS}. \quad (24)$$

从以上关系式可以看出几种光子源的光子记数分布均呈现出 Subpoisson 分布,这是由于测量过程中丢失了多光子信息造成的.

假设实际的单分子光子源与理想的双分子光子源具有相同的平均光子数,即  $\bar{n}_{RS} = \bar{n}_D = \bar{n}$ ,且满足  $Q_S \leq Q_D$ ,那么  $P_{RS}(2) < P_D(2)$ ,即

$$\frac{BS}{2} + \frac{B^2}{4} - \frac{B^2S}{4} < \frac{1}{2}\eta^2, \quad (25)$$

或

$$R_0 = \frac{\sqrt{\bar{n}^2 - \chi(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})^2}}{\bar{n} - \sqrt{\bar{n}^2 - \chi(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})^2} - \frac{1}{2}(\bar{n} - \sqrt{\bar{n}^2 - \chi(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})^2})}. \quad (30)$$

从(29)式可以看出对一定的平均光子数,信号背景比 SBR( $R$ )将随  $B$  的减小而增大,所以对实际单分子系统  $B < B_0$  时,有  $R > R_0$ .

$$P_{RS}(2) < \frac{1}{2}(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})^2. \quad (26)$$

由(19)(20)(25)式进一步可推得实际单分子光子源在满足  $Q_S < Q_D$  时,背景光的变化范围

$$B < \bar{n} - \sqrt{\bar{n}^2 - \chi(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})^2}. \quad (27)$$

设

$$B_0 = \bar{n} - \sqrt{\bar{n}^2 - \chi(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})^2}. \quad (28)$$

因此只要  $B < B_0$ ,即  $P_{RS}(2) < \frac{1}{2}(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})^2$  就可认为光子源为单分子系统.

下面分析实际单分子光子源在满足  $B < B_0$  时信号背景比 SBR 的变化范围.设信号背景比 SBR 为  $R$ ,由(16)式得

$$R = \frac{S}{B} = \frac{\bar{n} - B}{B - \frac{1}{2}B^2}. \quad (29)$$

当  $B = B_0$  时,

由(15)(16)(24)式获得实际单分子光子源的 Mandel 参数  $Q$  与信号背景比  $R$  以及平均光子数  $\bar{n}$  的关系式

$$Q_{RS} = \frac{\left(\frac{R+1 - \sqrt{(R+1)^2 - 2R\bar{n}}}{R}\right) \times \bar{n} - \frac{1}{2}\left(\frac{R+1 - \sqrt{(R+1)^2 - 2R\bar{n}}}{R}\right)^2}{\bar{n}} - \bar{n}. \quad (31)$$

### 3. 理论分析与讨论

根据(28)(30)式分别给出实际单分子光子源的  $B_0, R_0$  随平均光子数  $\bar{n}$  的变化曲线,如图 1 所示.从图可以看出不同的  $\bar{n}$  具有不同的  $B_0$  值,  $B_0$  随  $\bar{n}$  的增大快速增大,但是与  $B_0$  相对应的信号背景比 SBR( $R_0$ )的变化范围却不大,当平均光子数从  $0 \rightarrow 1$  变化时, SBR 值处在 1.6—2.4 之间.这就说明当 SBR 大于 2.4 时,具有相同平均光子数的实际单分子光子源和理想双分子光子源的 Mandel 参数  $Q$  满足  $Q_{RS} < Q_D$ .因此在实验中只要 SBR 大于 2.4 就可

以把  $Q_{RS} < Q_D$ ,即  $P(2) < \frac{1}{2}(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})^2$  作为单分子光子源的判据.

由(21)(22)(23)(31)式分别作出具有相同的平均光子数  $\bar{n}$  时,相干 Poisson 源,理想单分子光子源、理想双分子光子源以及 SBR( $R$ )值分别为 1.6 2.4 20 的实际单分子光子源的 Mandel 参数  $Q$  随  $\bar{n}$  的变化曲线,如图 2 所示.可以发现实际的单分子光子源的 Mandel 参数  $Q$  存在着两方面的特性:

1)当信号背景比等于及小于 1.6 时,由于背景光的影响使得  $Q_{RS} > Q_D$ ;当 SBR 趋近 0 时,单分子光子源的  $Q_{RS}$  趋近于 Poisson 源的  $Q_C$  值.在这种情

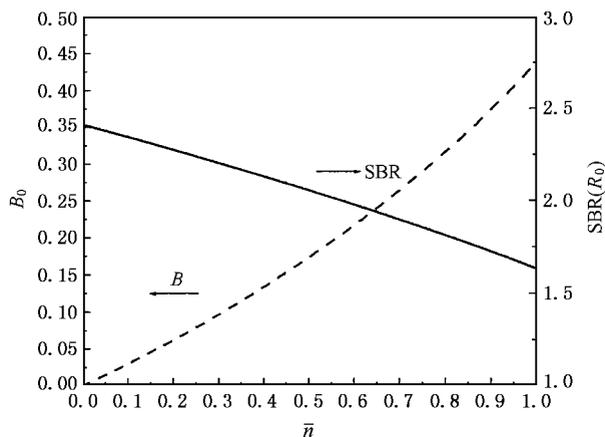


图1 背景  $B_0$  及信号背景比  $SBR(R_0)$  随平均光子数  $\bar{n}$  的变化曲线

况下由于背景光很强,测量已没有实际意义。

2)当信号背景比  $R = R_0$  时,  $Q_{RS} = Q_D$ ,  $Q_{RS}$  线与  $Q_D$  线完全重合;当  $R > 2.4$  时,  $Q_{RS} < Q_D$ ;  $R$  越大,  $Q_{RS}$  线越趋近于  $Q_S$  线,而在  $R = 20$  时  $Q_{RS}$  线已经很靠近  $Q_S$  线,实际单分子光子源接近理想单分子光子源,  $Q_{RS} \approx Q_S = -\bar{n}$ 。

可见信号背景比是决定光子源质量的一个重要指标。目前单分子光子源实验中的 SBR 值都普遍大于 2.4,如最早研究单分子光子源的 Lounis 小组在 2000 年的实验中获得 SBR 值为 6<sup>[5]</sup>,而 Roch 小组把信号背景比提高到了 20<sup>[15]</sup>。因此,从实际单分子光子源的 Mandel 参数随  $SBR(R)$  的变化特性来看,我们把  $Q_{RS} < Q_D$ ,即  $P(2) < \frac{1}{2}(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})$  作为判别单分子光子源的条件是充分的、合理的。

这里我们是通过比较单分子光子源与理想的双分子光子源的统计特性提出的判据,由于实际的双分

子光子源或两个以上的多分子光子源在相同平均光子数的条件下产生双光子事件的概率都大于理想双分子光子源产生的概率,因此这个判据不失一般性。

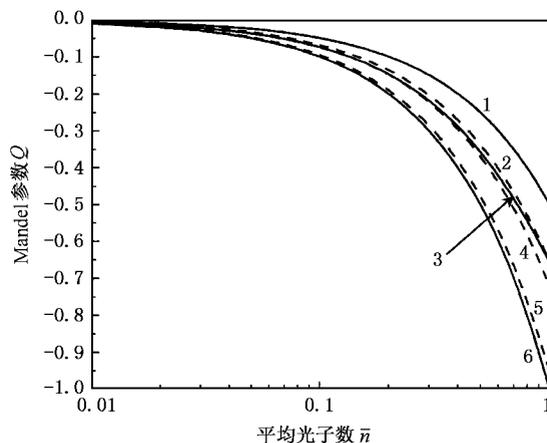


图2 几种光子源的统计特性(1表示 Poisson 源,3表示理想的双分子光子源,6表示理想的单分子光子源,2,4,5分别表示信号背景比分别为 1.6,2.4,20 的实际单分子光子源)

## 4. 结 论

基于标准的 HBT 测量方式,我们通过对单分子光子源、Poisson 统计源、理想双分子光子源统计特性的分析,比较了在具有相同平均光子数时这几种光子源的 Mandel 参数的关系,给出单分子系统的判别方法。在实验中测出单光子、双光子事件的统计概率,依据  $P(2) < \frac{1}{2}(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})$  判断光子源为单分子系统。另外还对所提出判据的合理性、有效性进行了分析,这种基于光子统计测量的方法同时也适用于单原子、量子点等其他单光子源的判别。

[1] Michel O 2002 *J. Chem. Phys.* **117** 10938

[2] Eli B et al 2004 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **55** 457

[3] Wang C et al 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1325 (in Chinese) [王琛等 2004 物理学报 **53** 1325]

[4] Beveratos A et al 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 187901

[5] Lounis B et al 2000 *Nature* **407** 491

[6] Fleury L et al 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 1148

[7] Beveratos A et al 2000 *Eur. Phys. J. D* **18** 191

[8] Christian K et al 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 290

[9] Christian B et al 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2722

[10] Basche T H et al 1992 *Phys. Rev. Lett.* **69** 1516

[11] Santori C et al 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 1502

[12] Jorg E et al 1997 *Chem. Phys. Lett.* **270** 464

[13] Alleaume R et al 2004 *New J. Phys.* **6** 85

[14] Xiao L T et al 2004 *Chin. Phys. Lett.* **21** 489

[15] Treussart F et al 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 093601

[16] Wang X B et al 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 617 (in Chinese) [王晓波等 2005 物理学报 **54** 617]

# Identifying single molecule based on the photon statistics<sup>\*</sup>

Peng Shuang-Yan<sup>1,2)</sup> Huang Tao<sup>1)</sup> Wang Xiao-Bo<sup>1)</sup> Shao Jun-Hu<sup>1)</sup> Xiao Liao-Tuan<sup>1)</sup> Jia Suo-Tang<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>*State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Device ,  
College of Physics and Electronics Engineering , Shanxi University , Taiyuan 030006 , China )*

<sup>2)</sup>*Department of Physics , Bijie College , Bijie 551700 , China )*

( Received 4 January 2005 ; revised manuscript received 7 April 2005 )

## Abstract

We theoretically study the photon counting statistics characterizations of the real single molecular photon source with a Poisson statistics background and that of an ideal double molecular system based on the standard HBT detection. Mandel parameter  $Q$  of each source with the same mean photons  $\bar{n}$  was analyzed. We have obtained an efficient method to identify single molecule by the two-photon statistics probability  $P(2)$ , which shows the relation  $P(2) < \frac{1}{2}(2 - \sqrt{4 - 2\bar{n}})^2$ . Additionally, we studied the effect of single-to-background ratio of the single molecular photon source on the criterion.

**Keywords** : single-molecule , Mandel parameter , Poissonian distribution , signal-to-background ratio

**PACC** : 3350 , 3580B 4250

---

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 60378004 ) , Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China ( Grant No. 20040108002 ) and the Scientific Research Foundation for the Returned Overseas Chinese Scholars of Shanxi Province and the Ministry of Personnel.