

利用光子统计概率测量单分子光子源的信号背景比^{*}

王晓波 黄 涛 邵军虎 降雨强 肖连团 贾锁堂[†]

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

(2004 年 4 月 7 日收到 2004 年 6 月 11 日收到修改稿)

理论上研究了基于 Hanbury-Brown-Twiss 探测方式, 利用单光子和双光子统计概率 $P_{\text{RS}}(1)$, $P_{\text{RS}}(2)$, 直接测量单分子光子源的信号背景比. 在研究过程中同时考虑到单分子布居于暂稳态和探测器量子效率对测量结果的影响. 在满足 $P_{\text{RS}}(1) \gg 2\sqrt{P_{\text{RS}}(2)} - 3P_{\text{RS}}(2)$ 的条件时, 研究给出了一种有效测量信号背景比的方法 $\text{SBR} = P_{\text{RS}}^2(1)/2P_{\text{RS}}(2)$. 另外, 分析讨论了 Mandel 参数 Q 与信号背景比之间的关系.

关键词: 单分子光子源, 信号背景比, 光子统计, 暂稳态, Mandel 参数

PACC: 3350, 3580, 4250

1. 引 言

高效单光子源的发展是量子计算、量子密码术以及量子网络等形式的量子信息处理的重要前提条件^[1-3]. 理想的单光子源能够在每一个抽运脉冲的触发周期 τ_{rep} 内仅产生一个光子, 并且以 100% 的效率传输到目的地. 对任意测量时间 T , 该光子源产生 $N = T/\tau_{\text{rep}}$ 个光子, 其标准偏差 $\Delta N = \sqrt{\langle N^2 \rangle_T - \langle N \rangle_T^2} = 0$ ($\langle \rangle_T$ 表示在测量时间 T 内的平均值), 这种光源实质上没有能量起伏, 从而达到了强度压缩极限^[2]. 最早对单分子光子源的研究是 Lounis 小组^[4,5] 在 2000 年于法国 Bordeaux 第一大学进行的. 他们把单个并五苯分子 (terrylene) 植于 p-三联苯 (p-terphenyl) 晶体薄片中, 把光子的收集效率提高到 4%. 这种形式的样品结构在室温下具有很高的光稳定性, 这是因为大气中的氧气是导致染料分子光漂白的主要因素, 把染料分子嵌入到晶格结构中从而使之与大气中的氧隔离. 由于晶体的吸收和散射, 他们获得的信号背景比 (SBR) 为 5 左右. 这种较低的信号背景比会导致单光子的统计分布接近 Poisson 规律. Roch 小组通过用聚甲基丙烯酸 (PMMA) 聚合物薄膜代替 p-terphenyl 晶体, 对 terrylene 染料分子荧光光子的收集效率达到 5%, 把 SBR 提高到 20.

研究发现单 terrylene 分子荧光具有反聚束效应和 Sub-Poisson 强度分布的非经典特性, 是一种较理想的非经典光源^[6].

实际的单分子光子源产生的光子是由理想单光子源的信号光和具有 Poisson 统计分布的背景光两部分构成, 到目前为止, 探测结果的 SBR 一直是检验光子源质量的一个重要指标^[7-9]. SBR 通常采用对二阶关联函数 $g^{(2)}$ 的测量来获得, 即利用二阶强度关联函数中心峰面积 (正比于 $B^2 + 2BS$, 这里 B 和 S 分别为背景光和信号光的平均光子数) 和邻近峰面积 (正比于 $(B + S)^2$) 之间的比值测量 $\text{SBR}^{[1,7,8]}$. 但是这种 start-stop 的测量方法不能准确给出光子统计概率以及光子数在时域上的起伏变化. Roch 小组通过记录每一次的光子探测事件, 计算在每一次激发脉冲当中记录到的光子数概率 $P_{\text{RS}}(n)$, 推导出这种触发式单光子源的 η, γ (η 为信号探测的量子效率, γ 代表背景的平均光子数), 从而获得 SBR (即 η/γ)^[6], 但是这种方法没有考虑单分子布居于暂稳态的影响, 而且假定信号光与背景光处于同一波长. 本文考虑单分子布居于暂稳态对光子统计概率的影响, 同时考虑到信号光和背景光可能处于不同的波长, 从而探测器对信号光和背景光的响应具有不同的量子效率, 通过理论计算给出一种有效的测量 SBR 的方法, 研究 SBR 对 Mandel 参数 Q 的影响.

^{*} 国家自然科学基金 (批准号 60378004), 山西省留学基金和人事部留学人员科技活动基金资助的课题.

[†] E-mail: tjia@sxu.edu.cn

2. 光子统计概率与 SBR 的分析

对于基于荧光辐射的单分子光子源, 荧光分子可以被认为处于一个简单的三能级系统^[10-12], 如图 1 所示. 除了在基态 S_0 和激发电子态 S_1 之间进行跃迁发出光子外 (ON 态), 分子还有较小的概率跃迁到暂稳态 T_s (OFF 态), 只要单分子布居于暂稳态 T_s , S_0-S_1 之间的跃迁就不会发生, 荧光就会暂时中断. 只有由 T_s 态弛豫到 S_0 态或 S_1 态, 分子才会继续发射荧光. 由此可知实验中测到的零光子事件除了由探测器的非理想量子效率 (小于 1) 引起外, 还能够由单分子布居于暂稳态引起, 假设出现 OFF 态的概率为 P_{off} , 有

$$P_{\text{on}} = \frac{q}{(p+q)}, P_{\text{off}} = 1 - P_{\text{on}} = \frac{p}{(p+q)}, \quad (1)$$

式中 p 指由 ON 态到 OFF 态的跃迁概率, q 指由 OFF 态到 ON 态的跃迁概率.

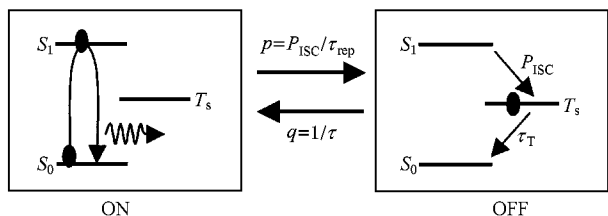


图 1 单光子源 (SPS) 的三重态能级结构及相应的 ON 态、OFF 态 (P_{ISC} 指系间交叉的概率, τ_T 指暂稳态 T_s 的寿命, τ_{rep} 指激发光脉冲重复周期)

在采用标准 Hanbury-Brown-Twiss (HBT) 探测方式^[12] 的实验中, 对光子流进行分束并用两个独立的单光子探测器 (如雪崩光电二极管, 光电倍增管或 CCD 器件等) 来探测光子信号. 然而, 在测量过程中单光子计数器首先对第一个到达的光子信号响应, 而对后续死区时间^[13] 内 (数十纳秒到数百纳秒) 到达的光子没有反应, 使得在取样时间小于死区时间时对每次光脉冲触发信号事件最多只能探测到一个光子, 单光子探测器的输出也不能区分对单光子或多光子的响应.

在理想的单光子源 (SPS) 中, 考虑 OFF 态的影响, 假定量子效率为 η , 光子统计概率为

$$P_s(0) = 1 - \eta P_{\text{on}}, \quad (2)$$

$$P_s(1) = \eta P_{\text{on}}, \quad (3)$$

$$P_s(n, n > 1) = 0, \quad (4)$$

对应单光子源的信号光的平均光子数为

$$\bar{n}_s = S = P_s(1) = \eta P_{\text{on}}. \quad (5)$$

单分子的背景光噪声满足 Poisson 统计分布^[14], 假设在每个脉冲周期中背景光的平均光子数为 γ , 由于信号和背景可能处于不同的波长, 对它们进行测量的量子效率也不一定相同, 这里用 η' 表示对背景光测量时的量子效率.

根据 Poisson 分布的定义式 $P(n) = \frac{\gamma^n}{n!} e^{-\gamma}$, $n = 0, 1, 2, \dots$ 为光子数, 对背景光进行测量时探测器在每个激发周期内平均获得 $\eta'\gamma$ 个光子, 那么可以得到满足 Poisson 分布的背景光的光子统计概率为

$$P_B(0) = P(0) = e^{-\eta'\gamma}, \quad (6)$$

$$\begin{aligned} P_B(1) &= P(1) + \frac{1}{2}P(2) + \frac{1}{4}P(3) + \dots \\ &= \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{2^{k-1}} P(k) \\ &= 2e^{-\eta'\gamma/2} (1 - e^{-\eta'\gamma/2}), \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} P_B(2) &= \frac{1}{2}P(2) + \frac{3}{4}P(3) + \dots \\ &= \sum_{k=1}^{\infty} \frac{2^{k-1} - 1}{2^{k-1}} P(k) \\ &= (1 - e^{-\eta'\gamma/2})^2, \end{aligned} \quad (8)$$

$$P_B(n, n > 2) = 0. \quad (9)$$

并由此得到每一个探测周期的平均光子数

$$B = \bar{n}_B = P_B(1) + 2P_B(2) = 2(1 - e^{-\eta'\gamma/2}). \quad (10)$$

由 (2) - (10) 式, 能够得到对包含 Poisson 分布背景光的单分子光子源的光子统计概率

$$P_{\text{RS}}(0) = (1 - S) \left(1 - \frac{B}{2}\right)^2, \quad (11)$$

$$P_{\text{RS}}(1) = (S + B - BS) \left(1 - \frac{B}{2}\right), \quad (12)$$

$$P_{\text{RS}}(2) = \frac{B}{4} (2S + B - BS), \quad (13)$$

$$P_{\text{RS}}(n, n > 2) = 0. \quad (14)$$

由 (12) 和 (13) 式, 消去 S , 忽略其中高阶项 B^3 等微小量, 可以得到

$$2B^2 + [12P_{\text{RS}}(2) + 4P_{\text{RS}}(1)]B - 8P_{\text{RS}}(2) = 0, \quad (15)$$

求解方程, 得

$$B = 3P_{\text{RS}}(2) + P_{\text{RS}}(1) - \sqrt{[P_{\text{RS}}(1) + 3P_{\text{RS}}(2)]^2 - 4P_{\text{RS}}(2)}, \quad (16)$$

在 $\frac{4P_{\text{RS}}(2)}{[3P_{\text{RS}}(2) + P_{\text{RS}}(1)]^2} \ll 1$ 的条件下, 即 $P_{\text{RS}}(1) \gg$

$2\sqrt{P_{RS}(2)} - 3P_{RS}(2)$ 时,可以得到

$$B = \frac{2P_{RS}(2)}{P_{RS}(1) + 3P_{RS}(2)}, \quad (17)$$

系统误差为 $\frac{2P_{RS}^2(2)}{[P_{RS}(1) + 3P_{RS}(2)]^3}$. 由(13)式,得到

$$S = \frac{4P_{RS}(2) - B^2}{2B - B^2} \approx P_{RS}(1). \quad (18)$$

利用(17),(18)式的结果,可以获得相应 SBR 的表达式

$$\text{SBR} = \frac{S}{B} = \frac{P_{RS}^2(1)}{2P_{RS}(2)}. \quad (19)$$

为了表征单分子光子源的光子数涨落,利用 Mandel 参数

$$Q \equiv \frac{\langle(\Delta n)^2\rangle}{\langle n\rangle} - 1, \quad (20)$$

由(6)–(9)式获得相应 Poisson 统计光子源的 Mandel 参数

$$Q_C = [P(0) \times \bar{n}^2 + P(1) \times (\bar{n} - 1)^2 + P(2) \times (\bar{n} - 2)^2] / \bar{n} - 1 = -\bar{n}_{RS}/2. \quad (21)$$

对应任意光子源的 Sub-Poisson 和 Super-Poisson 光子统计特性分别对应 $Q_S < -\bar{n}_{RS}/2$ 和 $Q_S > -\bar{n}_{RS}/2$.

对于单分子光子源的 Mandel 参数可以由(11)–(13)式光子统计概率直接得到

$$Q_{RS} = \frac{2P_{RS}(2)}{[P_{RS}(1) + 2P_{RS}(2)]} - [P_{RS}(1) + 2P_{RS}(2)]. \quad (22)$$

3. 结果分析

在图 2(a)中,分别给出了背景 B 、信号 S 在不同的 $P_{RS}(2)$ 值时随 $P_{RS}(1)$ 的变化曲线,我们发现 B 随 $P_{RS}(1)$ 的增大而显著减小,同时 $P_{RS}(2)$ 越小, B 减小得越快. 说明单分子光子源的背景光需要用 $P_{RS}(1)$ 和 $P_{RS}(2)$ 一起表征, $P_{RS}(1)$ 的测量结果越大,而 $P_{RS}(2)$ 的越小,那么对应背景光越弱. 提高 $P_{RS}(1)$ 的方法有选择量子效率较高的单光子计数器以及降低由 ON 态到 OFF 态的跃迁概率 p (p 值受到单分子所处的工作环境的影响). 降低 $P_{RS}(2)$ 可以通过选择合适的基底材料如 PMMA^[6], 以减少单分子周围可能存在的发光元素.

而对于信号光 S , 随 $P_{RS}(1)$ 的增大而近于线性增大,但是受 $P_{RS}(2)$ 的影响不大. 说明单分子光子源的信号光可以直接用 $P_{RS}(1)$ 来表征, $P_{RS}(1)$ 的测

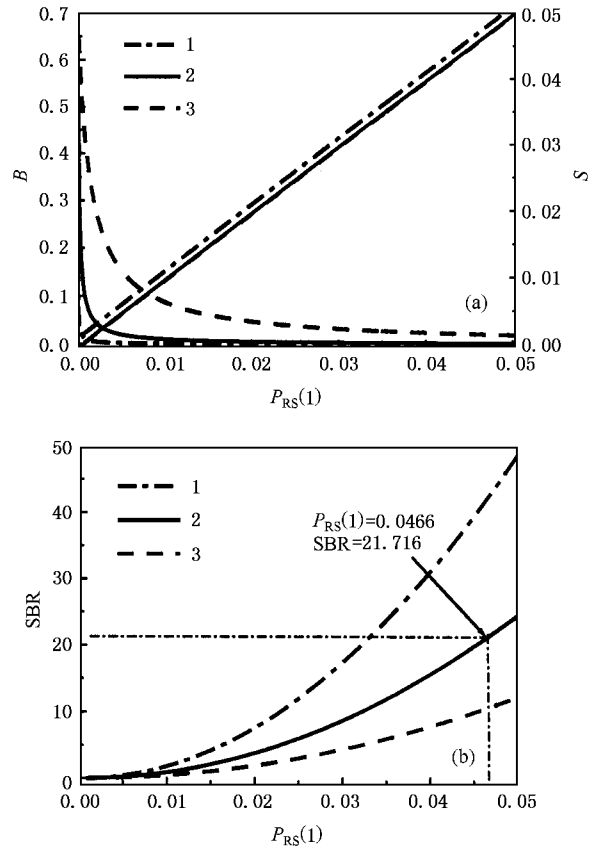


图 2 (a)背景 B 、信号 S 与 $P_{RS}(1)$ 的关系, (b) 信噪比 SBR 与 $P_{RS}(1)$ 的关系 (曲线 1, 2, 3 分别对应不同的 $P_{RS}(2)$ 值 5×10^{-6} , 5×10^{-5} , 5×10^{-4})

量值越大,信号光越强.

图 2(b)中给出相应 SBR 与 $P_{RS}(1)$ 的关系,不同的曲线对应于不同的 $P_{RS}(2)$ 值. 从图中可以看出在相同的 $P_{RS}(2)$ 时, SBR 随 $P_{RS}(1)$ 的增大而增大,且 $P_{RS}(2)$ 越大, SBR 增长越慢 (曲线越平坦). 在 $P_{RS}(1)$ 较大时, SBR 与 $P_{RS}(1)$ 近于线性关系, 与(19)式表示的结果一致. 表明只有在较大 $P_{RS}(1)$ 的情况下, SBR 能够直接用 $P_{RS}(1)$ 来表征. 在 Roch 小组的实验中^[6], 典型测量得到 $P_{RS}(1) = 0.0466$, $P_{RS}(2) = 0.00005$, 由我们的理论结果得到 $\text{SBR} = 21.716$.

根据(22)式给出了单分子光子源的 Mandel 参数 Q 与 SBR 的关系曲线 (图 3), 同时给出了作为参考的具有相同平均光子数的 Poisson 光源的 Q 参数. 从图 3 可以看出, 对于不同 $P_{RS}(1)$ 值, 当 $\text{SBR} < 2$ 左右时, Q_{RS} 值都大于相应的 Q_C , 表示光子源服从 Super-Poisson 分布^[15]; SBR 在 2 附近时 $Q_{RS} = Q_C$, 此时单光子源等同于经典相干光源, 服从 Poisson 分

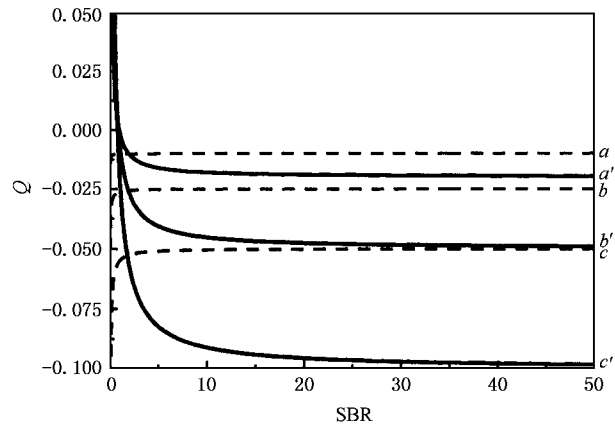


图 3 Mandel 参数 Q 与 SBR 的关系曲线(实线 a' , b' , c' 为实际单光子源的 Mandel 参数 Q_{RS} ; 虚线 a , b , c 为具有相同平均光子数的 Poisson 源的 Mandel 参数 Q_C . $a(a')$, $b(b')$, $c(c')$ 分别对应不同的 $P_{RS}(1)$ 值 0.02, 0.05, 0.1)

布 $SBR > 2$ 时, Q_{RS} 值变得小于相应的 Q_C , 服从 Sub-Poisson 分布. 当 $SBR > 20$ 时, Q_{RS} 值逐渐趋于稳定, 不再随 SBR 的变化而变化.

具有相同平均光子数的 Poisson 光源的 Mandel 参数 Q_C 随着 SBR 的增大而增大, 但是在 $SBR > 2$ 时

趋于稳定, 几乎不受 SBR 的影响. 另外, Q_{RS} 和 Q_C 都随 $P_{RS}(1)$ 的增大而减小, 而且可以看到随着 $P_{RS}(1)$ 的增大, Q_{RS} 和 Q_C 之间的距离在拉大, 即 Sub-Poisson 特性在加强, 对应单光子源的质量在提高. 但当 SBR 超过 20 时, Q_{RS} 和 Q_C 之间的距离逐渐达到最大值, 说明进一步提高 SBR 对改善单光子源的质量不起作用.

4. 结 论

本文以荧光分子的三能级系统做模型, 考虑到分子布居于暂稳态对测量结果的影响, 理论给出利用单光子和双光子统计概率分布直接测量单光子光子源 SBR 的方法. 特别在 $\frac{4P_{RS}(2)}{[3P_{RS}(2) + P_{RS}(1)]^2} \ll 1$ 的近似条件下, 给出了一种有效的测量信噪比的方法 $SBR = \frac{P_{RS}^2(1)}{2P_{RS}(2)}$. 研究分析了单光子源的信号光、背景光与 SBR 的物理表征方法. 同时分析了 Mandel 参数 Q 随 SBR 的变化规律, 研究结果表明在 SBR 超过 20 时, 进一步提高 SBR 不会改善单光子源的质量.

[1] Gisin N *et al* 2002 *Rev. Mod. Phys.* **74** 145

[2] Wu S D, Zhan Z M and Jin L X 2002 *Chin. Phys.* **11** 1272

[3] Beveratos A, Brouri R, Gacoin T, Villing A, Poizat J P and Grangier P 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 187901

[4] Lounis B and Moerner W E 2000 *Nature* **407** 491

[5] Fleury L, Segura J M, Zumofen G, Hecht B and Wild U P 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 1148

[6] Treussart F, Alleaume R, Le Floch V, Xiao L T, Courty J M and Roch J F 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 093601

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

[8] Michalet X and Weiss S 2002 *C. R. Physique* **3** 619

[9] Brunel C, Lounis B, Tamarat P and Orrit M 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2722

[10] Molski A, Hofkens J, Gensch T and Schryver F D 2000 *Chem. Phys. Lett.* **318** 325

[11] Veerman J A, Garcia M F, Kuipers L and Van Hulst N F 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2155

[12] Brouri R, Beveratos A, Poizat J P and Grangier P 2000 *Phys. Rev. A* **62** 063817

[13] Zhang Z M, Zhou S K and Li X F 1999 *Chin. Phys.* **8** 571

[14] Kurtsiefer C, Mayer S, Zarda P and Weinfurter H 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 290

[15] Xiao L T, Zhao Y T, Huang T, Zhao J M, Yin W B and Jia S T 2004 *Chin. Phys. Lett.* **21** 489

Determination of signal-to-background ratio of single molecular photon source based on photon counting statistics^{*}

Wang Xiao-Bo Huang Tao Shao Jun-Hu Jiang Yu-Qiang Xiao Lian-Tuan Jia Suo-Tang

(State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Device, College of Physics and
Electronics Engineering, Shanxi University, Taiyuan 030006, China)

(Received 7 April 2004 ; revised manuscript received 11 June 2004)

Abstract

The real triggered single molecule source is recognized as an ideal single photon source with a Poissonian statistics background. By considering the effect of the triplet state in single molecule energy level, an explicit function is given for the signal-to-background ratio (SBR) by use of photon-counting statistics. When $P_{\text{RS}}(1) \gg 2\sqrt{P_{\text{RS}}(2)} - 3P_{\text{RS}}(2)$, we present an efficient method to determine the SBR of the triggered single photons source, which shows $\text{SBR} = P_{\text{RS}}^2(1)/2P_{\text{RS}}(2)$. In addition, the expression of Q , as a function of signal-to-background ratio, has been obtained. It turns out that this method is simpler and gives a greater accuracy than previous procedures.

Keywords: single molecular photon source, signal to background ratio, photon counting statistics, triplet state, Mandel parameter

PACC: 3350, 3580, 4250

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60378004) and the Scientific Research Foundation for the Returned Overseas Chinese Scholars of Shanxi Province and the Ministry of Personnel of China.