

脉冲激发三能级体系半导体量子点的 单光子发射效率*

李耀义¹⁾²⁾ 程木田¹⁾ 周慧君¹⁾ 刘绍鼎¹⁾ 王取泉^{1)†} 薛其坤²⁾

1) 武汉大学物理系, 武汉 430072)

2) 中国科学院物理研究所表面物理国家重点实验室, 北京 100080)

(2005 年 8 月 26 日收到, 2005 年 11 月 29 日收到修改稿)

研究了脉冲激发下单个半导体量子点中单光子发射的统计特性. 在旋转波近似条件下, 由系统粒子数演化主方程并结合量子回归理论推导了二阶相关函数的运动方程. 利用此方程讨论了二阶相关函数随输入脉冲面积的关系. 在窄脉冲宽度的脉冲激发下, 单光子的发射概率 p 和效率 η 都随着强度的增强而产生振荡. 研究表明, 采用窄脉冲宽度, 当输入脉冲面积在 π 附近时可以得到较高的单光子发射效率.

关键词: 半导体量子点, 单光子发射, 三能级系统

PACC: 4250, 7320D, 7855

1. 引言

单光子发射源在量子计算^[1]、量子保密通信^[2,3]以及基本的量子光学实验中都有广泛的应用. 在适当的外场激发下, 单原子^[4]、单分子^[5]以及单个半导体量子点等单个量子体系都可以实现单光子发射. 近年来, 半导体量子点作为一种固态量子比特和单光子源, 受到人们的极大关注, 有大量的文献报道其非经典光发射特性^[6-9].

实验上, 自从 Hanbury-Brown 和 Twiss^[10] 提出测量光发射二阶相关度的实验以来, 人们对多种体系光发射的二阶相关函数进行了大量的实验研究. 理论上, 对于恒场激发下的二能级体系的光发射统计性质的研究比较多^[11-14]. 对脉冲激发下光发射统计特性的研究需要结合光学 Bloch 方程^[13], 这方面的文献报道相对较少. 尤其是对于脉冲激发下的半导体量子点体系, 由于涉及到了多个能级的粒子数运动, 理论分析比较复杂. 对一些重要实验研究结果的深入理论分析十分欠缺.

本文利用系统粒子数演化主方程和量子回归定理^[15,16]推导了脉冲激发下多能级体系中光子发射二

阶自相关函数的运动方程, 并利用此方程研究了半导体量子点中光子发射的统计特性, 讨论了其单光子发射效率与激发脉冲的脉冲宽度和输入脉冲面积等参量的关系.

2. 理论分析

2.1. 三能级结构模型

脉冲激发下单量子点中光子发射单激子能级结构如图 1 所示. 图中 $|v\rangle$, $|e\rangle$, $|g\rangle$ 分别为激子真空态、第一激子激发态以及激子基态. 量子点受到脉冲激发后在激发态 $|e\rangle$ 产生一个电子-空穴对(激子), 通过声子作用激子无辐射弛豫到激子基态 $|g\rangle$, 然后复合发射光子. Γ_{eg} 是从激子激发态到激子基态的弛豫速率, Γ_{gv} 是处于激子基态的电子-空穴对复合速率. $\Omega(t) = \mu E(t)/\hbar$ 为 $|v\rangle$ 和 $|e\rangle$ 之间跃迁的 Rabi 频率, 其中 $E(t)$ 为电场振幅的包络, μ 为激子激发态 $|e\rangle$ 与激子真空态 $|v\rangle$ 之间的跃迁偶极矩.

在旋转波近似下, 系统的哈密顿量算符为

$$\hat{H} = \hbar\Delta\hat{\sigma}_{ee} + \frac{1}{2}\hbar\Omega(t)(\hat{\sigma}_{ev} + \hat{\sigma}_{ve}), \quad (1)$$

描述系统粒子数演化的主方程为

* 国家自然科学基金(批准号: 10534030, 10474075)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: qqwang@whu.edu.cn

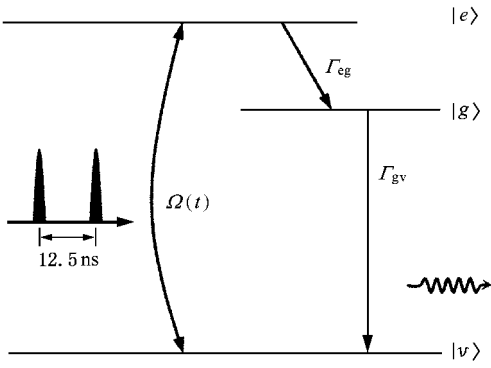


图1 脉冲激发下单量子点中光子发射单激子能级结构示意图 激发脉冲的频率为 80.2 MHz

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}, \hat{\rho}] + \frac{\Gamma_{eg}}{2}(2\hat{\sigma}_{ge}\hat{\rho}\hat{\sigma}_{eg} - \hat{\sigma}_{ee}\hat{\rho} - \hat{\rho}\hat{\sigma}_{ee}) + \frac{\Gamma_{gv}}{2}(2\hat{\sigma}_{vg}\hat{\rho}\hat{\sigma}_{gv} - \hat{\sigma}_{gg}\hat{\rho} - \hat{\rho}\hat{\sigma}_{gg}). \quad (2)$$

这里失谐量 $\Delta = \omega_e - \omega_L$, 其中 ω_e 是激发态到真空态的跃迁频率, ω_L 是激光频率; $\hat{\sigma}_{ij} = |i\rangle\langle j|$ 为偶极跃迁算符.

2.2. 二阶相关函数

利用主方程(2)以及量子回归定理^[15,16]可以求得一组含有激子基态的二阶双时相关函数的微分,

$$\begin{aligned} & \frac{d}{d\tau} G_{gg}^{(2)}(t, \tau) \\ &= \Gamma_{eg} G_{ee}^{(2)}(t, \tau) - \Gamma_{gv} G_{gg}^{(2)}(t, \tau), \\ & \frac{d}{d\tau} G_{ee}^{(2)}(t, \tau) \\ &= i \frac{\Omega(t+\tau)}{2} [G_{ve}^{(2)}(t, \tau) - G_{ev}^{(2)}(t, \tau)] \\ & \quad - \Gamma_{eg} G_{ee}^{(2)}(t, \tau), \\ & \frac{d}{d\tau} G_{ve}^{(2)}(t, \tau) \\ &= i \frac{\Omega(t+\tau)}{2} [G_{ee}^{(2)}(t, \tau) - G_{vv}^{(2)}(t, \tau)] \quad (3) \\ & \quad - \left(i\Delta + \frac{\Gamma_{eg}}{2}\right) G_{ve}^{(2)}(t, \tau), \\ & \frac{d}{d\tau} G_{ev}^{(2)}(t, \tau) \\ &= i \frac{\Omega(t+\tau)}{2} [G_{vv}^{(2)}(t, \tau) - G_{ee}^{(2)}(t, \tau)] \\ & \quad + \left(i\Delta - \frac{\Gamma_{eg}}{2}\right) G_{ev}^{(2)}(t, \tau), \\ & G_{gg}^{(2)}(t, \tau) + G_{vv}^{(2)}(t, \tau) + G_{ee}^{(2)}(t, \tau) \\ &= \rho_{gg}(t), \end{aligned}$$

式中

$$G_{mn}^{(2)}(t, \tau) = \hat{\sigma}_{gv}(t) \hat{\sigma}_{mn}(t+\tau) \hat{\sigma}_{vg}(t) \quad (m, n = v, e, g). \quad (4)$$

初始条件为

$$\begin{aligned} G_{gg}^{(2)}(t, 0) &= 0, \\ G_{ee}^{(2)}(t, 0) &= 0, \\ G_{ve}^{(2)}(t, 0) &= 0, \\ G_{ev}^{(2)}(t, 0) &= 0, \\ G_{vv}^{(2)}(t, 0) &= \rho_{gg}(t). \end{aligned}$$

激子基态的二阶相关函数^[17]

$$C_{gg}^{(2)}(\tau) = \lim_{T_d \rightarrow \infty} \int_0^{T_d} G_{gg}^{(2)}(t, \tau) dt,$$

其中 T_d 为总的探测时间, 它远大于激发脉冲的脉冲宽度.

对于单个双曲正割型脉冲

$$E(t) = E_0 \operatorname{sech}(t - t_0) \tau_p,$$

可得

$$\Omega(t) = \Omega_0 \operatorname{sech}(t - t_0) \tau_p,$$

其中 Ω_0 为 Rabi 频率 Ω 的幅值, t_0 为脉冲中心, τ_p 为脉冲宽度. 脉冲面积 θ 的定义为

$$\theta = \int_{-\infty}^{\infty} \Omega(t) dt.$$

所以单个双曲正割型脉冲的面积为

$$\theta = \pi \tau_p \Omega_0.$$

图2是在脉冲宽度为 6 ps 的脉冲激发下, 脉冲面积 $\theta = 0.5\pi, \pi, 1.5\pi, 2\pi$ 时的激子基态的二阶相关函数. 由图2可知, 二阶相关函数 $C_{gg}^{(2)}(\tau)$ 由一系列周期性排列的峰组成, 其周期等于激发脉冲的周期. 当脉冲面积较小时, 零延迟时间处的峰受到高度的抑制, 此时量子点在单个脉冲激发下只产生一个光子的概率较大. 而当脉冲面积较大时, 在零延迟时间处有一个分裂的峰, 这个分裂的峰的相对面积越大表明在单个脉冲激发下产生多个光子的概率越大^[18].

2.3. 参量 p 的振荡

为了定量研究在单个脉冲激发下产生单光子概率的大小, 引入参量 p , 它定义为二阶相关函数在零延迟的尖峰面积与旁边尖峰面积的比值. p 值越小, 单光子发射概率越大^[18]. 图3为4种脉冲宽度的脉冲激发下, 参量 p 随不同激发强度的变化. 在弱激发下 ($\theta < \pi$) 4种脉冲宽度的 p 值变化平缓. 而在强激发下, 当 $\tau_p = 60, 20$ 和 6 ps 时 p 值出现振荡, 且后

两种情况振荡得更强烈,当 $\tau_p = 600$ ps 时 p 值仅仅随着激发强度的增加而增大,没有振荡.从图 3 可以

看出,脉冲宽度越小参量 p 随着激发强度的增加振荡就越显著.

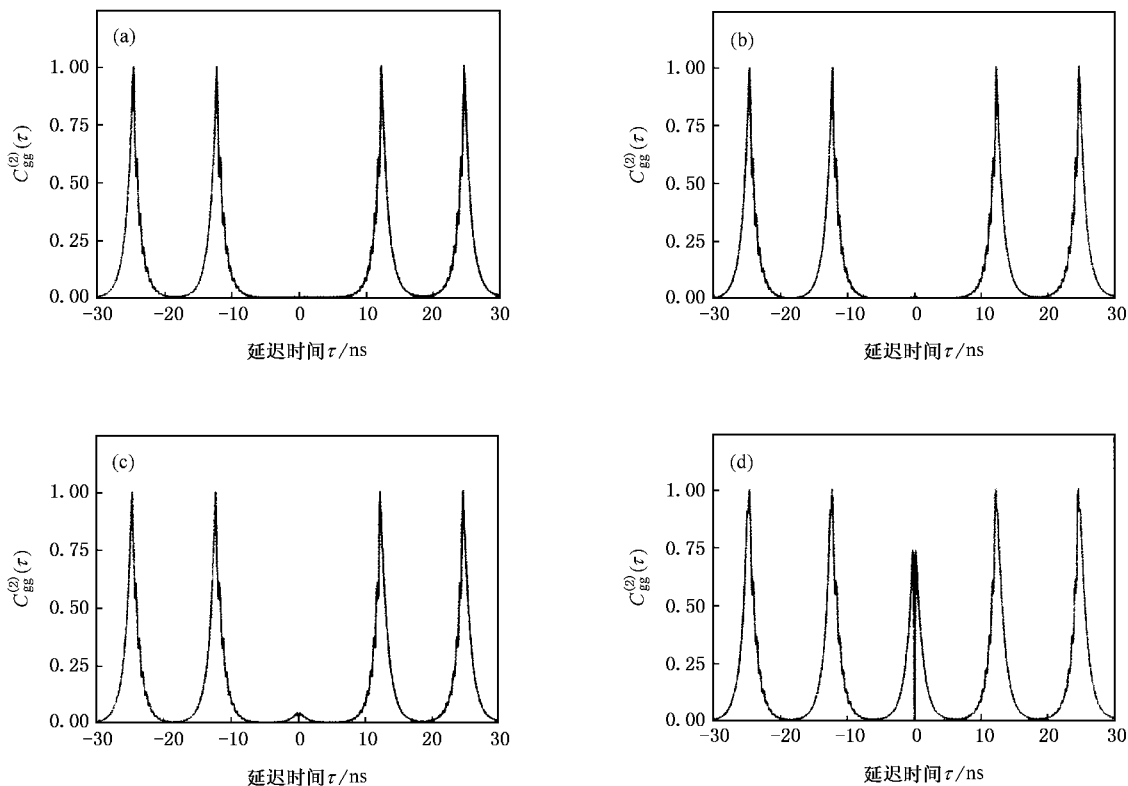


图 2 在脉冲宽度为 6 ps 的脉冲激发下激子基态光发射的二阶相关函数 (a) $\theta = 0.5\pi$ (b) $\theta = \pi$ (c) $\theta = 1.5\pi$ (d) $\theta = 2\pi$

图 4 显示了在脉冲宽度为 6 ps 的脉冲激发下,参量 p 和激子基态粒子数的平均值 $\bar{\rho}_{\text{eg}}$ 随脉冲面积 θ 的振荡情况.当 $\bar{\rho}_{\text{eg}}$ 随脉冲面积 θ 变化幅度很大时,在 $\bar{\rho}_{\text{eg}}$ 为极小值的地方对应着参量 p 的极大值.利用脉冲激发的二阶相关函数的定义式

$$C_{\text{eg}}^{(2)}(\tau) = \lim_{T_d \rightarrow \infty} \int_0^{T_d} G_{\text{eg}}^{(2)}(t, \tau) dt,$$

以及运动方程组 (3) 中的

$$G_{\text{eg}}^{(2)}(t, \tau) + G_{\text{vv}}^{(2)}(t, \tau) + G_{\text{ee}}^{(2)}(t, \tau) = \rho_{\text{eg}}(t),$$

得到

$$C_{\text{eg}}^{(2)}(\tau) + G_{\text{vv}}^{(2)}(\tau) + G_{\text{ee}}^{(2)}(\tau) = NT\bar{\rho}_{\text{eg}}. \quad (5)$$

式中,

$$G_{\text{vv}}^{(2)}(\tau) = \lim_{T_d \rightarrow \infty} \int_0^{T_d} G_{\text{vv}}^{(2)}(t, \tau) dt,$$

$$G_{\text{ee}}^{(2)}(\tau) = \lim_{T_d \rightarrow \infty} \int_0^{T_d} G_{\text{ee}}^{(2)}(t, \tau) dt,$$

以及考虑到脉冲的周期性,

$$\lim_{T_d \rightarrow \infty} \int_0^{T_d} \rho_{\text{eg}}(t) dt = NT\bar{\rho}_{\text{eg}},$$

其中 $\bar{\rho}_{\text{eg}}$ 为在一个激发周期 T 内激子基态粒子数的

平均值,表达式为

$$\bar{\rho}_{\text{eg}} = \frac{1}{T} \int_T \rho_{\text{eg}}(t) dt. \quad (6)$$

从图 4 可见,当 $\bar{\rho}_{\text{eg}}$ 随脉冲面积 θ 发生起伏时,由 (5) 式可知在 $\tau \neq 0$ 处峰的面积也会发生起伏,但对于 $\tau = 0$ 处的峰,其已被抑制因而面积变化不大.所以,由于 $\tau \neq 0$ 处的峰和 $\tau = 0$ 处的峰随光强变化的幅度不同,从而它们的相对比值 p 随之出现振荡.当 $\bar{\rho}_{\text{eg}}$ 变化幅度很大时,随着 $\bar{\rho}_{\text{eg}}$ 的减小 $\tau \neq 0$ 处峰的面积也会相应减少,但比 $\tau = 0$ 处峰的面积减少得多,从而参量 p 增加.所以,在 $\bar{\rho}_{\text{eg}}$ 为极小值之处对应着参量 p 的极大值.这一结论的前提条件是 $\bar{\rho}_{\text{eg}}$ 随脉冲面积 θ 变化幅度要大.

2.4. 单光子发射效率

对于理想的单光子光源,在脉冲激发下, $p = 0$, 其二阶相关函数如图 2(a) 所示,但实际体系中存在一定的多光子发射概率,表现为二阶相关函数在零延迟时间附近出现一个低峰,如图 2(b)–(d) 所示.

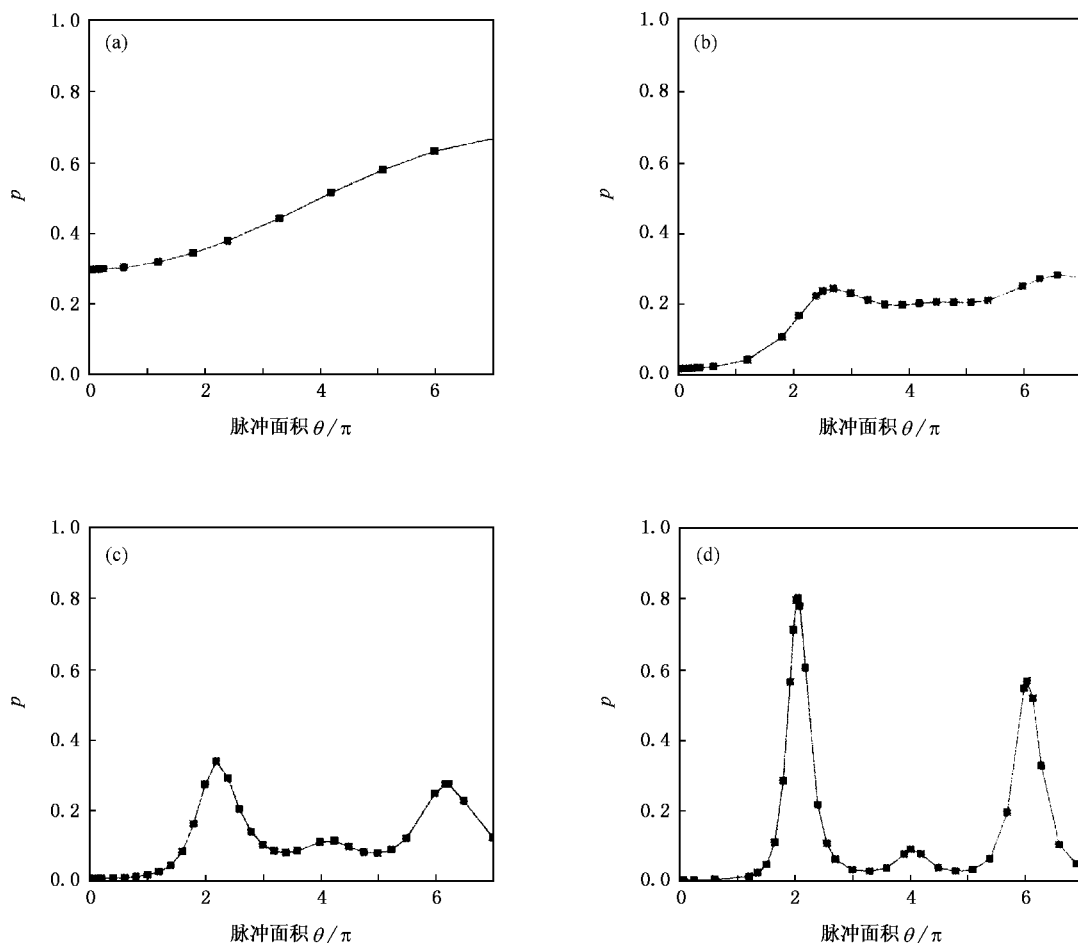


图 3 不同脉冲宽度的脉冲激发下参量 p 随脉冲面积 θ 的变化 (a) $\tau_p = 600$ ps (b) $\tau_p = 60$ ps (c) $\tau_p = 20$ ps (d) $\tau_p = 6$ ps

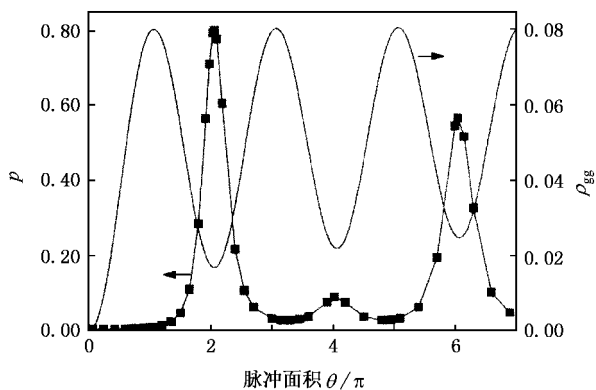


图 4 p 和激发基态平均粒子数 $\bar{\rho}_{eg}$ 随脉冲面积 θ 的振荡情况 激发脉冲的脉冲宽度为 6 ps

光子数量, 引入参量 η ,

$$\eta = \Gamma_{eg} T \bar{\rho}_{eg} (1 - p). \quad (7)$$

式中, $\Gamma_{eg} T \bar{\rho}_{eg}$ 值越大表示激发的光子数越多, p 越小 (即 $1 - p$ 越大) 表示发射单个光子的概率越大. 因此 η 表征了单光子发射的效率, η 越大表示发射

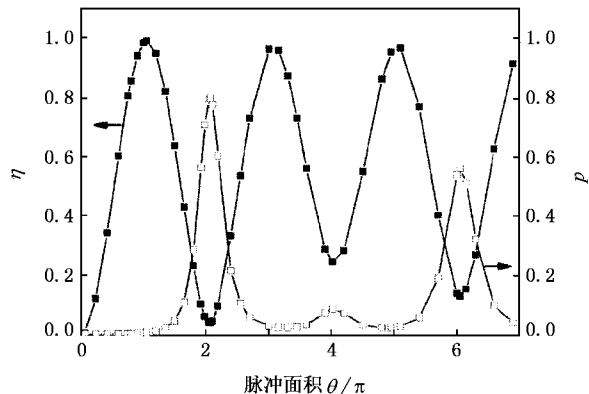


图 5 在脉冲宽度为 6 ps 的脉冲激发下参量 η 和 p 随脉冲面积 θ 的振荡

对于单光子光源, p 越小越好. 由图 3 可见, 要得到尽量小的 p 必须降低激发强度, 但激发强度太低会导致单光子数量减少, 因此单纯的 p 参量不足以描述单光子发射特性. 同时考虑单光子发射概率和单

单光子的效率越高. 在激发强度很弱时, 由图 3 可知随着激发强度的降低 p 下降得非常缓慢, 趋近于一个非零常数, 而由图 4 可以看出 $\bar{\rho}_{\text{eg}}$ 随着激发强度的降低迅速降为零. 所以, 在激发强度很弱时参量 η 随着激发强度的降低而迅速地降低, 此时产生单光子的概率大但数量少. 在激发强度较强时, 随着激发强度的增强 $\bar{\rho}_{\text{eg}}$ 在较大值处产生振荡, p 也在较大值

处产生振荡. 所以, 在激发强度较强时参量 η 随着激发强度的增加在较小值处产生振荡, 此时发射光子的数量大但产生单光子的概率小.

图 5 为在脉冲宽度为 6 ps 的脉冲激发下, 参量 η 和 p 值随脉冲面积 θ 的变化情况. 由图 5 可以看出, 在脉冲面积 $\theta \approx \pi$ 时参量 η 最大. 图 6 给出了 η_{max} 与脉冲宽度的关系. 由图 6 可以看出, 脉冲宽度越短 η_{max} 越大.

3. 结 论

采用量子回归理论结合光学 Bloch 方程, 推导了三能级体系半导体量子点在脉冲激发下二阶相关函数的运动方程. 结果表明: 对于固定脉冲宽度的脉冲激发, 随着输入脉冲面积 θ 的增大产生多个光子的概率变大, 但在脉冲面积 $\theta \approx \pi$ 处产生单光子效率最高; 减小激发脉冲宽度, 可以提高单光子发射效率. 理论研究结果对于提高半导体量子点固态单光子器件的单光子发射效率提供了一定的依据.

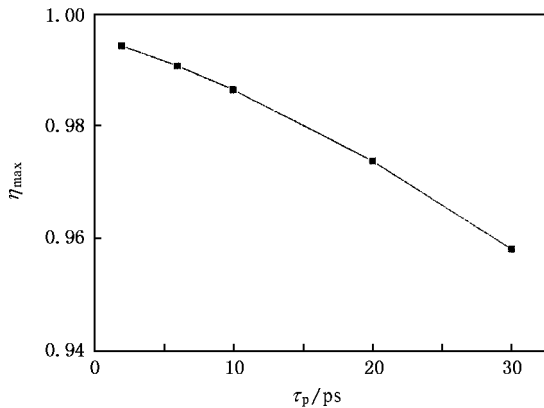


图 6 单光子发射效率最大值随脉冲宽度的变化

[1] Brown K R , Lidar D A , Whaley K B 2001 *Phys. Rev. A* **65** 012307
 [2] Peng C Z , Yang T , Bao X H *et al* 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 150501
 [3] Wu G , Zhou C Y , Chen X L *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3622 (in Chinese) [吴 光、周春源、陈修亮等 2005 物理学报 **54** 3622]
 [4] Kimble H J , Dagenais M , Mandel L 1977 *Phys. Rev. Lett.* **39** 691
 [5] Basche T , Moerner W E , Orrit M *et al* 1992 *Phys. Rev. Lett.* **69** 1516
 [6] Michler P , Imamoglu A , Mason *et al* 2000 *Nature* **406** 968
 [7] Santori C , Pelton M , Solomon G Y *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 1502
 [8] Becher C , Kiraz A , Michler P *et al* 2001 *Phys. Rev. B* **63** 121312

[9] Zhou H J , Cheng M T , Liu S D *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 4141 (in Chinese) [周慧君、程木田、刘绍鼎等 2005 物理学报 **54** 4141]
 [10] Hanbury-Brown R , Twiss R Q 1956 *Nature* **178** 1046
 [11] Pegg D T , Loudon R , Knight P L 1986 *Phys. Rev. A* **33** 4085
 [12] Plenio M B , Knight P L 1998 *Rev. Mod. Phys.* **70** 101
 [13] Zheng Y , Brown F L H 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 238305
 [14] Al-Hilfy A , Loudon R 1985 *J. Phys. B* **18** 3697
 [15] Lax M 1968 *Phys. Rev.* **172** 350
 [16] Loudon R 1980 *Rep. Prog. Phys.* **43** 913
 [17] Kiraz A , Atature M , Imamoglu A 2004 *Phys. Rev. A* **69** 032305
 [18] Santori C , Pelton M , Solomon G *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 1502

Efficiency of single photon emission in three-level system of semiconductor quantum dots with pulsed excitation *

Li Yao-Yi^{1,2)} Cheng Mu-Tian¹⁾ Zhou Hui-Jun¹⁾ Liu Shao-Ding¹⁾ Wang Qu-Quan^{1)†} Xue Qi-Kun²⁾

¹⁾ Department of Physics, Wuhan University, Wuhan 430072, China)

²⁾ State Key Laboratory of Surface Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

(Received 26 August 2005 ; revised manuscript received 29 November 2005)

Abstract

The statistic characteristics of single photon emission in single semiconductor quantum dot with pulse excitation have been investigated. With rotating-wave approximation, we deduce the dynamics equations including second-order correlation function from the master equations of the populations and discuss the correlation function of photon emission from the exciton combination under different input pulse areas. There will appear an apparant split peak around zero time delay under strong excitation. For short pulse width, the probability of single photon emission p and the efficiency of single photon emission η oscillate as the excitation intensity increases. It is revealed that high efficient single photon emissions can be realized in this system when excited with input pulse area about π and short pulse width.

Keywords : semiconductor quantum dots , single photon emission , three-level system

PACC : 4250 , 7320D , 7855

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10534030 , 10474075).

† Corresponding author. E-mail : qqwang@whu.edu.cn