

半導體微共振腔極化子雷射

Semiconductor Microcavity Polariton Laser

周昱薰、盧廷昌

Yu-Hsun Chou, Tien-Chang Lu

由於固態材料內存在著由電子電洞對形成的激子 (exciton)，因此在一個高品質因子的微共振腔當中，光子可以和主動層內的激子進行強耦合而產生能態分裂，並形成一種半光半物質的準粒子稱為激子-極化子 (exciton-polariton)，亦簡稱為極化子 (polariton)。極化子具有玻色子的特性，當大量凝聚於最低能態時將形成玻色愛因斯坦凝聚並釋放出如同雷射的同調光。近年來，半導體微共振腔 (semiconductor microcavity) 被視為一種極具潛力的固態光子元件，透過設計不同的主動層結構以及材料，半導體微共振腔被認為可應用於垂直共振腔面射型雷射 (VCSEL)、單光子光源以及其他光電子元件中⁽¹⁻⁶⁾。本篇除了簡介半導體微共振腔極化子雷射的發展之外，同時說明分析與量測極化子雷射所需的儀器與技術。

In a high quality factor microcavity, photons can strongly couple with the excitons, formed by electrons and holes by Coulomb interaction in solid materials, to generate a new kind of quasi-particle, called exciton-polariton or polariton, with half-matter and half-light characteristics. Polariton is a kind of Boson, which is able to form Bose-Einstein condensation through stimulated scattering of polaritons at the ground state and to emit coherent photons when polaritons escape from the cavity. Recently, semiconductor microcavities have been considered as a promising solid light sources because they can potentially be applied in vertical-cavity surface emitting lasers, single photon sources and other optoelectronic devices⁽¹⁻⁶⁾. In this report, we not only give an introduction to semiconductor microcavity polariton lasers, but also introduce the technology we need to characterize the polariton lasers.

一、極化子與玻色愛因斯坦凝聚

1992 年，C. Weisbush 及其研究團隊，成功的在砷化鎵平面微共振腔 (microcavity) 系統內證實了激子-極化子 (exciton-polariton) 的存在，此重大發現隨即引起各界熱烈關注⁽⁷⁾。由於共振腔極化子具有玻色子 (boson) 的特性，與費米子 (fermion) 必須遵守的包利不相容原理有根本上的差異，玻色子最大的特點在於所有系統內的玻色子能夠同時佔據於同一能態，此種粒子大量積累在同一基態下的現象

被稱之為玻色愛因斯坦凝聚態，是愛因斯坦與玻色於 1925 年提出的概念。在此概念提出後的 68 年間，玻色愛因斯坦凝聚一直是在超高真空以及極低溫度下的原子系統內被觀測，然而此玻色愛因斯坦凝聚一直無法成功的在室溫下達成凝聚條件。關鍵在於形成玻色愛因斯坦凝聚的臨界溫度 (T_c) 與系統中玻色子的質量 (m) 成反比關係，即 $T_c \cong 3.3125 \frac{\hbar^2 n^{2/3}}{mk_B}$

。其中 $\hbar = 1.054 \times 10^{-34}(\text{J}\cdot\text{s})$ 為普郎克常數， n 為系統內粒子的密度， $k_B = 1.381 \times 10^{-23}(\text{J}\cdot\text{K})$ 是波

茲常數。傳統原子系統的質量約為 10^{-27} Kg，與之對應的臨界溫度隨著原子種類的不同約是 $T_c = 1$ nK – 1μ K 之間。有別於傳統原子系統，共振腔極化子的質量是由共振腔中的光子以及激子共同決定，其質量約為 10^{-34} Kg，對應的臨界溫度隨著半導體材料的不同約是 $T_c = 1$ K – 353 K，與傳統原子系統相比差了 10^8 的數量級，使得我們有機會能在室溫下觀察玻色愛因斯坦凝聚⁽⁸⁾。除此之外，在達成玻色愛因斯坦凝聚態之後，系統內的極化子在生命週期 (lifetime) 結束後釋放出的光子為具有同調性的光，其特性與雷射光相似。然而，傳統雷射系統要達到光放大必須先讓高能態的電子數目超越低能態電子數目，使得受激輻射 (stimulated emission) 的機會增加，高能態電子數目大於低能態電子數目的現象我們稱之為居量反轉 (population inversion)，之後才能達到雷射共振的條件。有別於傳統雷射，微共振腔雷射不需達到居量反轉，微共振腔雷射內的極化子透過受激散射 (stimulated scattering) 使得系統中的極化子散射到最低能階並形成玻色愛因斯坦凝聚，最後放出同調的光，稱之為極化子雷射。由於不需要額外能量達成居量反轉，微共振腔極化子雷射的閾值超低，甚至可能實現無閾值的雷射元件。除此之外使用微共振腔極化子作為雷射光源的好處是其具有極高的可操控性與

快速反應，這使得極化子雷射在未來光學積體電路上光源以及調變器的應用極具潛力。

1. 微共振腔極化子

圖 1 顯示了一個常見的微共振腔結構，由兩組高反射率的分散式布拉格反射鏡 (distributed Bragg reflector, DBR) 作為光學共振腔，並且以具有光學增益的半導體材料作為發光主動層。在此共振腔內，一開始有因滿足 Fabry-Perot 條件而形成的共振腔光子態 (cavity mode) 以及激子態 (exciton mode) 兩種狀態，兩者之間的能量十分相近時，在彼此之間會形成很強烈的能量交換現象，進而產生出新的態，也就是極化子態，分裂過後的態有兩個分支，一為上極化子 (upper polariton)，另一個為下極化子 (lower polariton)，如圖 1 中所示。

圖 2 顯示了極化子的能量對動量關係圖，其中黑色虛線以及紅色虛線分別代表了共振腔光子以及激子的色散關係，而藍色曲線是共振腔光子模態以及激子模態耦合之後分裂出的上、下極化子。由於激子的色散關係取決於材料本身，一般而言不會受到結構的影響，而共振腔光子的色散關係則取決於共振腔結構的設計，因此共振腔光子模態與激子模態在平面動量 $k = 0$ 的點上時常會有能量的差異，此差異我們稱之為能量失調量 (detuning, δ)，此能

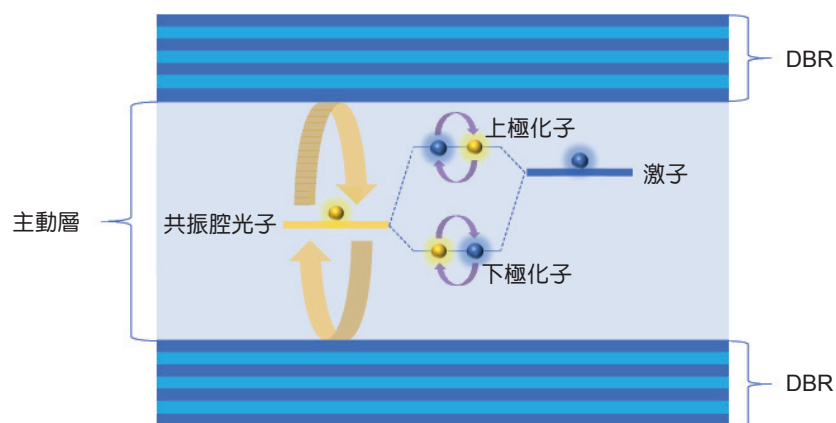


圖 1. 微共振腔內的物理機制。在一個由上下兩對分散式布拉格反射鏡 (DBR) 所組成的共振腔內，具有光學增益的主動層受到激發產生的激子將與共振腔內光子產生耦合，並分裂出上、下兩個極化子態，並在在生命期結束後將釋放出高度同調的雷射光。

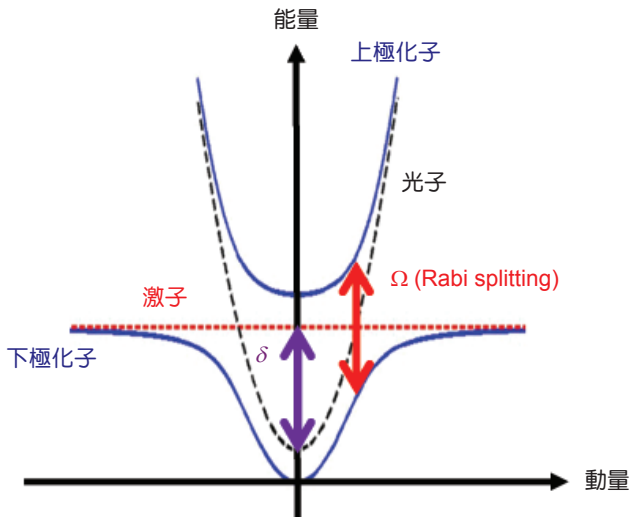


圖2. 極化子能階示意圖。共振腔光子與主動層激子在動量為零時的能量差稱之為能量失調量 (detuning, δ)，此差值會影響耦合之後極化子之色散程度

量差值會影響共振腔光子與激子的耦合狀態。在此耦合程度的強弱可以由拉比分裂 (Rabi splitting, Ω) 判斷—即光子模態和激子模態在能量交疊的時上、下極化子分支的能量差值。極化子系統的能量失調

量以及拉比分裂將會影響到極化子的色散關係，並進一步影響形成玻色愛因斯坦凝聚的機會。為了能達到玻色愛因斯坦凝聚並且放出雷射光，半導體微共振腔則需要滿足下列幾項條件：

(1) 高共振腔品質係數 (Q-factor)

在高品質係數的微共振腔中，光子能量損失速率較慢，光子存在於共振腔的生命期較長，由於極化子是由光子與激子共同組成，其生命週期將與光子的生命週期成正相關，因此提高共振腔品質因子將提高極化子的生命期，從而增加極化子形成玻色愛因斯坦凝聚的機會。因此，半導體微共振腔的磊晶品質、晶格匹配程度以及 DBR 反射率都會影響極化子的生命週期。一般而言，半導體微共振腔極化子的生命週期在數十個皮秒 (ps) 以上，在分析上，研究人員可以透過 TCSPC (Time-Correlated Single Photon Counting) 進行時間解析螢光激發 (Time resolved PL) 量測，相關量測架設如圖 3 所示。

其工作原理是將脈衝雷射光以分光鏡分成兩道，其中一道光進入光電倍增管 (photomultiplier, PMT) 轉換成電子訊號並做為參考訊號源

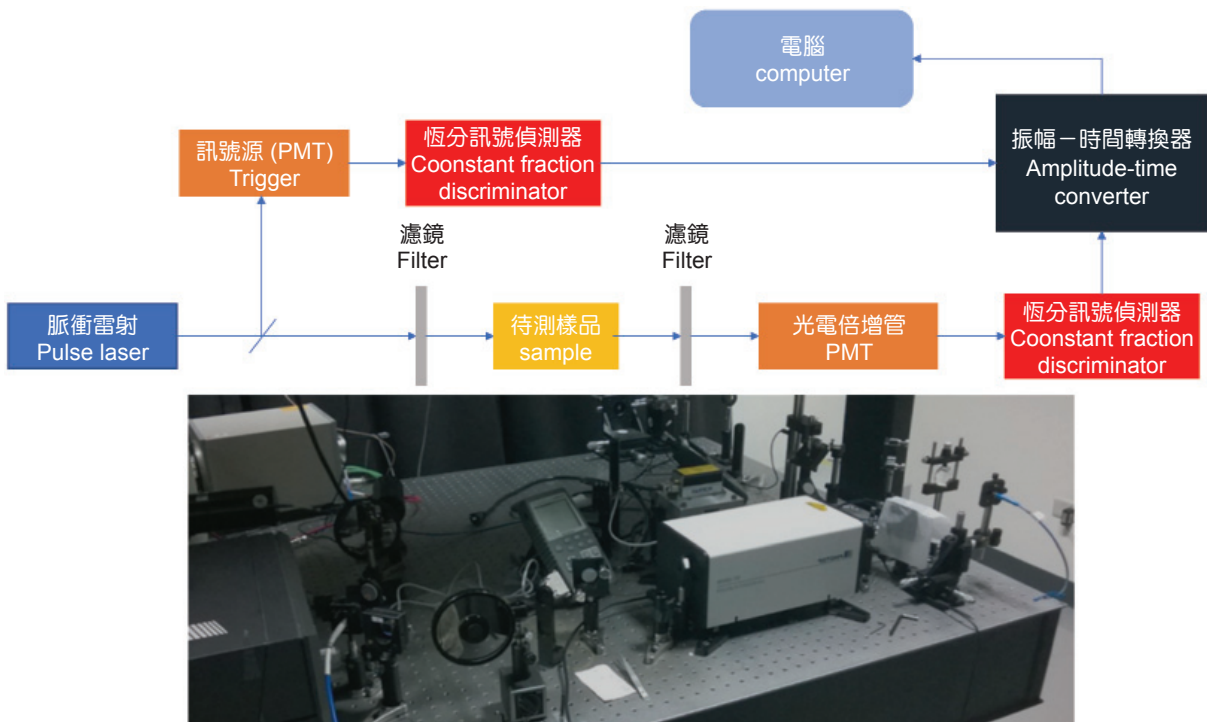


圖3. TCSPC量測架構示意圖。

半導體材料	GaAs	CdTe	GaN	ZnO
能隙 (eV)	1.519	2.670	3.507	3.377
波爾半徑 (Å)	15	3	3	1.8
激子束縛能 (meV)	~10	~20	~26	~60

表 1. 常見半導體微共振腔主動層材料之參數⁽⁸⁾。

(trigger)，訊號被恆分訊號偵測器 (constant fraction discriminator) 偵測到後再傳入振幅-時間轉換器 (amplitude-time converter)，並以偵測到訊號源的時間點做為初始時間啟動一個隨時間線性增加的電壓訊號。另一道由脈衝雷射分出來的光將打在半導體微共振腔上，樣品激發出的光會由另外一個光電倍增管接收並將訊號導入恆分訊號偵測器，由樣品所提供的訊號一旦抵達振幅-時間轉換器之後便終止電壓的增長，其中所經過的時間便是對應到半導體微共振腔內極化子的生命週期。TCSPC 的量測時間極限或是時間解析度是被光電倍增管的時間解析所限制，一般光電倍增管的時間解析可以在數百個皮秒左右，對於極好的半導體微共振腔而言是足夠的。若要更精進量測的時間解析度，或是量測品質因子較差的半導體微共振腔，可以將光電訊號偵測器改用高速掃描攝影機 (streak camera)，讓時間解析度達到數個皮秒等級；或是用 pump-probe 的架構讓時間解析度變得更好。

(2) 較強的激子束縛能 (exciton binding energy)

由於極化子是由光子與激子共同組合而成，激子的特性以及數量將會影響到極化子形成的難易程度。激子是一個電洞以及一個電子束縛在一起形成的類氫準粒子 (quasi-particle)。一般而言，當激子數量達到飽和濃度上限時，會因為彼此之間的散射機率增加而形成游離的電子與電洞的電漿態，這些電子與電洞的電漿態無法與光子有效地耦合形成具有特定量子特性的極化子，而激子束縛能越大的材料越能抵抗激子散射所引起的解離現象。因此，挑選激子束縛能大與激子飽和濃度高的材料來製作微共振腔，有助於維持高能量注入時的極化子數目。而激子飽和濃度和激子的波爾半徑有關，波爾半徑越小的材料其激子飽和濃度越高，同時，波爾半徑越小的材料其對應的激子束縛能越大，相關的影響我們將在下面詳述。

(3) 較高的激子與光子耦合強度

即使在微共振腔中，共振腔態的品質係數與激子的波爾半徑及束縛能都滿足了上述的條件，但是如果這兩者的耦合強度很弱，還是沒有辦法達到極化子的形成條件。因此，我們微共振腔材料選擇以及結構上的設計，我們會希望激子的振盪強度 (oscillator strength) 以及光場分布與材料區域的重疊程度能越高越好。

表 1 為目前幾種研究極化子的材料特性參數表，其中砷化鎵 (GaAs) 以及碲化鎘 (CdTe) 的激子束縛能太小，與環境熱能 $3/2 k_B T$ 相比，其激子只能存在於 4K 的極低溫環境，因此在溫度較高的環境下，砷化鎵以及碲化鎘微共振腔系統內光與激子的交互作用程度會大幅降低，因此，關於砷化鎵以及碲化鎘微共振腔的研究，都必須在很低的溫度下進行，因此在此種低激子束縛能材料系統內要在室溫下觀察到極化子物理現象是非常困難的，也同時限制了此種材料系統將來的應用。為了克服室溫下無法操作極化子雷射的困難，有許多研究群團隊開始進行其它材料的研究，而氮化鎵 (GaN) 與氧化鋅 (ZnO) 的高激子束縛能使得它們在室溫 300K 下不會解離成自由電子電洞對，使這兩種材料系統為目前最適合在室溫下實現極化子雷射的材料。雖然，氮化鎵材料本身的性質較優於砷化鎵，但是在氮化鋁鎵 (AlGaIn) 布拉格反射鏡的材料系統中，其長晶品質卻沒有砷化鎵微共振腔的布拉格反射鏡好，主要是氮化鎵和氮化鋁 (AlN) 之晶格常數差異很大，而且兩者的折射率差異小，所以要磊晶成長高品質高反射率的紫外光區布拉格反射鏡相當不容易。並且在共振腔主動層的部分，氮化鎵量子井結構品質也較砷化鎵差，除了有銜聚集造成的量子井不均勻的現象外，還有因為成長在 c 軸上氮化鎵單軸壓電晶體所內建的電場所導致的電子電洞物質波空間重疊性差的問題。因此如何克服這些困難，成為氮化鎵極化子的研究成為一項重要的條件。另一

方面，由表 1 可知氧化鋅 (ZnO) 為上述半導體材料之中激子束縛能最高的，這對微共振腔研究特性是一大優點，對於能在較高溫度下觀察極化子的物理現象來說，此條件非常重要，但是在 ZnO 材料的磊晶長成上，如同氮化鎵一樣，不論是匹配的布拉格反射鏡、p-形半導體塊材，或是量子井結構的品質，都是目前許多研究團隊在努力改善的方向。

(4) 較大的極化子散射速率

在低注入的狀況下，微共振腔中形成的極化子會與聲子產生散射作用，使極化子弛豫 (relaxation) 至極化子態分支的最低態。但是通常單純只靠聲子的散射，弛豫的速率並不够快，大部分的極化子還沒弛豫至最低態時，極化子就已經達到生命週期的上限消散掉了，因此形成所謂的瓶頸效應 (bottleneck effect)。所以，要在低注入狀況下，達到熱平衡狀態並形成玻色愛因斯坦凝聚，是非常困難的。為了克服瓶頸效應，我們可以將外加能量注入提高。在高注入的情況下，極化子與極化子之間的散射作用將顯著增加。主要是因為當我們外加能量上升時，微共振腔內的極化子數目會增加，藉此

產生誘發性散射 (stimulated scattering)，並使得散射到最低態的極化子數目上升，增加玻色愛因斯坦凝聚的機會。這個現象可以透過變角度光激發實驗量測 (Angle resolved PL, ARPL)，如圖 4 所示，固定入射光的角度並透過改變光纖收光的角度，我們可以有效的觀察到極化子數目在色散關係上的分布。

如圖 5 所示，在低注入的情況下極化子會大量囤積在高態，隨著注入的極化子數目增加散射效率提升，極化子開始能夠克服生命期太短無法凝聚的情況，最後在達到一定大小的注入之後，大量的極化子將累積在最低態形成玻色愛因斯坦凝聚，並且釋放出雷射光。

二、極化子元件近期發展

目前大部分微共振腔極化子的實驗只能在低溫的光激發系統下實現，僅有少數團隊成功實現室溫光激發極化子元件，國立交通大學的盧廷昌教授團隊成功地實現了在高溫 80 °C 極化子雷射的操作⁽¹⁰⁾，打破了世界紀錄，也說明了極化子雷射將來的

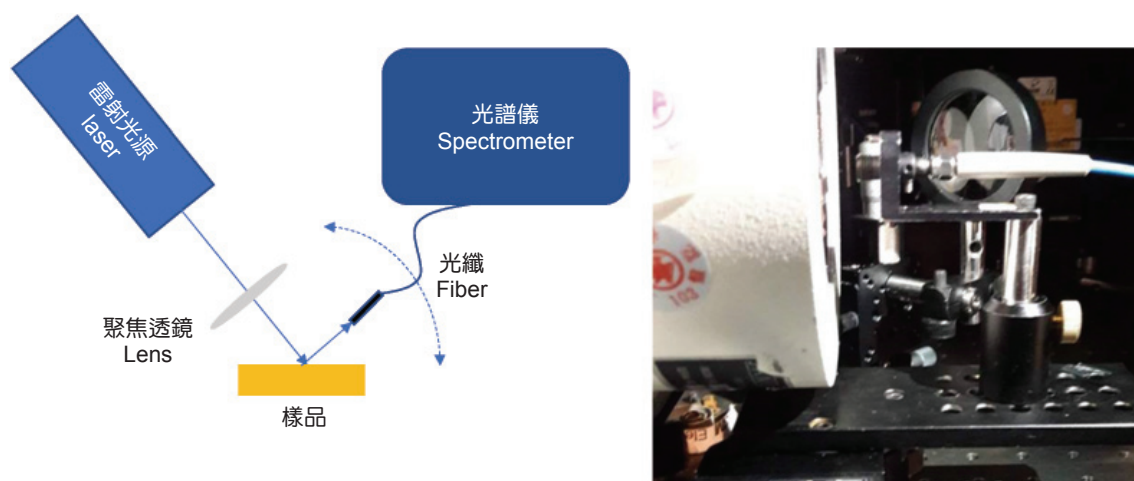


圖 4. 變角度光激發量測架構示意圖。外加的雷射光源以聚焦透鏡打入半導體微共振腔的主動層，通常雷射光源的光子能量會比主動層的激子能量大，以非共振的形式提供激子，可以避免用共振光源激發時可能會產生三階非線性效應的機會。半導體微共振腔中產生的極化子會因其半光半物質的特性，以光子的形式逸散到共振腔外，此逸散出去的光子與共振腔中的極化子具有一對一的特性匹配，亦即具有相同的能量動量關係，我們藉由變化光纖的收光角度，對應到收進光譜儀中的信號，可以分析出極化子的色散關係以及數量分布。

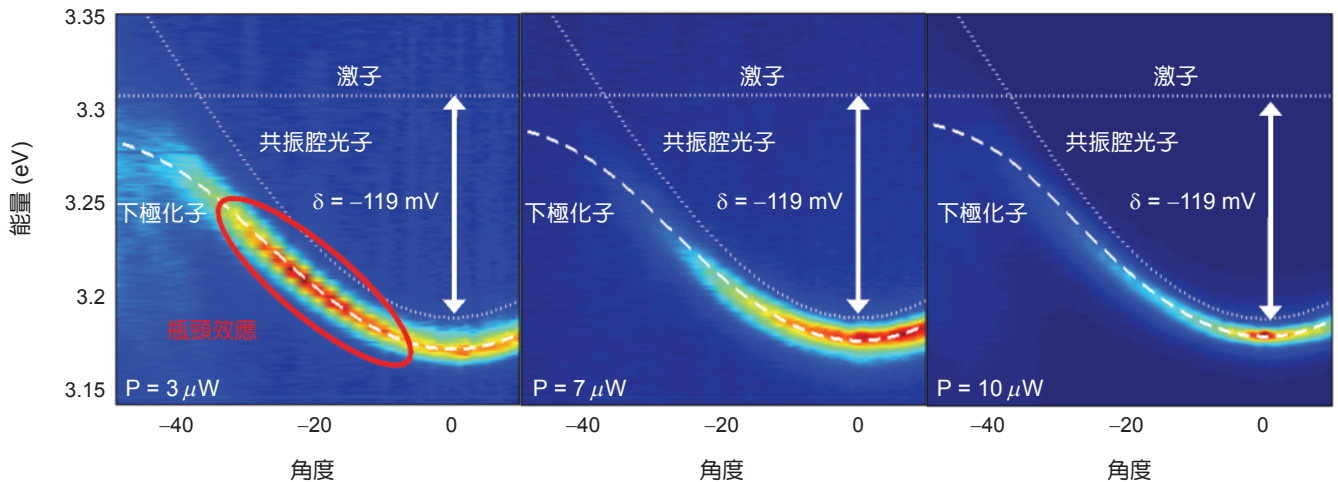


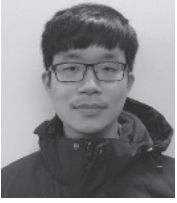
圖 5. 極化子弛豫過程。在能量注入較小的情況下，極化子與聲子的散射效率不佳，大部分的極化子累積在高能態無法在生命期結束前散設至最低能態，一旦注入能量增加，瓶頸效應將被高效的極化子-極化子散射所克服，並在最低能態形成玻色愛因斯坦凝聚⁽⁹⁾。

可以有上商業化應用的潛力。而在電激發元件而言，第一個電激發的砷化鎵極化子發光二極體一直到 2008 年才由 Tsintzos 等人以砷化鎵在低溫下而實現⁽¹¹⁾，隨後在 2011 年，透過製作高品質的微共振腔，我們團隊成功地實現了第一個室溫下電激發的氮化鎵極化子二極體元件，更增加了極化子元件的實用性⁽¹²⁾。而第一個被發表的電激發極化子雷射則是在 2013 年 5 月由德國的 Schneider 研究團隊利用一對 n 型以及 p 型的導電 DBR，配合數層的砷化鎵 (InGaAs) 量子井 (quantum well) 作為主動層，製作出高品質半導體微共振腔成功量測到極化子雷射發光的現象，然而上述實驗只能在 10K 左右的溫度下實現，缺乏實用性⁽¹³⁾。為了能夠達成室溫下的電激發操作，研究人員把希望寄託在寬能隙的氮化鎵系統，因為其激子束縛能 (26 meV) 較室溫熱能 (25.6 meV) 來的大，有助於電激發極化子雷射在室溫下進行操作。直到 2014 年，美國密西根大學的 Bhattacharya 團隊利用垂直注入側向氮化鎵共振腔的方式，成功實現了室溫電激發氮化鎵極化子雷射⁽¹⁴⁾。但是此共振腔製作技術困難，有相當大的改良空間。除了改善室溫下電激發操作的難題之外，由於極化子雷射內部具有多個模態彼此競爭，使其同調性較傳統雷射而言較為薄弱，這使得它們在如資料傳輸上的應用不具優勢，為了改善

此一缺點，密西根大學的 B. Zhang 與其團隊，將其中一面 DBR 反射鏡改用次波長的光柵來替代，利用光柵來選擇共振的模態，大幅的提高極化子雷射的同調性⁽¹⁵⁾。雖然目前極化子雷射的發展有諸多困難，但研究人員正以非常驚人的速度一一克服，相信此迅速發展的領域在未來的幾年依然會有顯著的突破並且實現可商業化的實用性元件。

參考文獻

1. K. Iga, F. Koyama & Kinoshita, *IEEE J. Quant. Electron.*, **24**, 1845 (1988).
2. K. J. Vahala, *Nature*, **424**, 839 (2003).
3. Z. L. Yuan, *et al.*, *Science*, **295**, 102(2002).
4. H. G. Park, *et al.*, *Science*, **305**, 1444 (2004).
5. H. Matsubara, *et al.*, *Science*, **319**, 445 (2008).
6. M. Furchi, *et al.*, *Nano Lett.*, **12**, 2773(2012).
7. Weisbush, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa, *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 3314 (1992).
8. H. Deng, Dynamic condensation of semiconductor microcavity polaritons, Doctoral dissertation (2006).
9. T.-C. Lu, *et al.*, *Opt. Expr.*, **20** (5), 5530 (2012)
10. Y. Y. Lai, *et al.*, *Light Science and Applications*, **2**, e76 (2013)
11. S. I. Tsintzos. *et al.*, *Nature*, **453**, 372(2008).
12. T.-C. Lu, *et al.*, *Nano Lett.*, **11**, 2791(2011)
13. C. Schneider. *et al.*, *Nature*, **497**, 348 (2013).
14. P. Bhattacharya. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 236802 (2014).
15. B. Zhang *et al.*, *Light Sci. Appl.*, **3**, e135 (2014).



周昱薰先生為國立交通大學照明與能源光電所博士，現為美國密西根大學物理系博士後研究員。

Yu-Hsun Chou received his Ph.D. from Institute of Lighting and Energy, National Chiao Tung University. He is currently a postdoctoral researcher in the Department of Physics, University of Michigan, USA.



盧廷昌先生為國立交通大學光電所博士，現任國立交通大學光電系教授。

Tien-chang Lu received his Ph.D. from Institute of Electro-Optical Engineering, National Chiao Tung University. He is currently a professor in the Department of Photonics and the Institute of Electro-Optical Engineering, National Chiao Tung University.