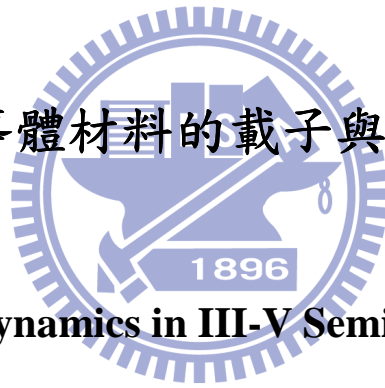


國立交通大學

應用化學系碩士班

碩士論文

三五族半導體材料的載子與自旋動力學



Carrier and Spin Dynamics in III-V Semiconductor Materials

研究生：林新欽

指導教授：孫建文 博士

中華民國一百年七月

三五族半導體材料的載子與自旋動力學

Carrier and Spin Dynamics in III-V Semiconductor Materials

研究生：林新欽

Student : Shin-Chin Lin

指導教授：孫建文 博士

Advisor : Dr. Kien-Wen Sun

國立交通大學

應用化學系碩士班



Submitted to M. S. Program, Department of Applied Chemistry
College of Science

National Chiao Tung University

In partial Fulfillment of the Requirements

For the Degree of

Master of Science

In

Applied Chemistry

July 2011

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國一百年七月

三五族半導體材料的載子與自旋動力學

學生：林新欽

指導教授：孫建文 博士

國立交通大學

應用化學系碩士班



半導體自旋電子學是一門研究如何操控自旋的自由度，以發展出節能、低放熱、高速運作的電子元件，其研究包含自旋的注入、相位維持及偵測等議題，都與自旋動態特性密切相關，因此半導體自旋動力學的研究是開發實用的自旋電子元件的重要基礎。

本篇論文從三維的 GaAs 深入至零維度材料-InAs/GaAs 量子環的自旋動態特性探討，以了解巨觀與介觀材料的自旋特性差異。在研究自旋動力學前，必須先了解材料的載子動態特性，因此將論文分成兩大部分：「半導體奈米結構的載子動力學」及「半導體塊材及量子環的自旋動力學」。

第一部份，我們利用解析度約 200 飛秒(fs) 的 Up-conversion 超快時

間解析光譜系統，探討未摻雜與調變摻雜自組裝量子環的載子捕捉與鬆弛過程。我們發現當在低光激發密度時，摻雜的量子點基態和激發態的載子捕捉速率較未摻雜的量子環快，這是由於摻雜電子或電洞的量子環存在內建的冷載子，加速載子-載子散射與捕捉電洞或電子進入量子環的激態及基態。

第二部份，我們利用自旋鬆弛時間解析光譜系統來探討本質、n 型及 p 型 GaAs 塊材的自旋動力學。根據 GaAs 塊材在室溫下的自旋極化時間解析及分析三大自旋鬆弛機制：Elliott-Yafet (EY), D'yakonov-Perel (DP) 及 Bir-Aronov-Pikus (BAP) 的相對重要性，我們發現自旋極化鬆弛時間只有大約幾十皮秒 (picosecond, ps) 且 DP 機制扮演重要的角色。除此之外，我們也量測出不到三百飛秒 (femtosecond) 的電洞鬆弛時間。最後我們探討砷化銦/砷化鎵量子環的自旋動態特性，由於量子環具三維的量子侷限，預期可以比塊材維持更長的自旋相位時間。然而量子環基態與激發態的自旋鬆弛時間不到 1ps，這是由於載子激發在量子環 barrier 上，載子在抵達激發態及基態前必須經由很多冷卻過程 (如載子-載子散射、載子-聲子散射、次能帶內散射)，導致自旋快速地鬆弛。我們應該將載子直接激發在量子環內，再一次檢驗量子環的自旋動力學。

關鍵字：載子動力學，自旋動力學，砷化銦/砷化鎵量子環，砷化鎵塊材，

自旋鬆弛機制，載子冷卻過程

Carrier and Spin Dynamics in III-V Semiconductor Materials

Student : Shin-Chin Lin

Adviser : Dr. Kien-Wen Sun

M. S. Program, Department of Applied Chemistry
National Chiao Tung University

Abstract

Semiconductor spintronics has opened a research field devoted to the manipulation of the spin degree of freedom and the developing of electronic devices with energy conservation, low heat dissipation, and high operation speed. The studies of spin-based devices including spin injection, phase coherence and spin detection, are closely related to spin dynamics. Therefore, the research of spin dynamics in semiconductors is essential to the development of practical spin-based electronic devices.

This thesis begins with the investigations on spin dynamics in bulk GaAs and gradually moves toward the dynamics in InAs/GaAs quantum rings in order to understand the difference of spin properties between macroscopic and mesoscopic materials. However, before the exploration on spin dynamics, we must fully understand the carrier dynamics in the same materials. Therefore, this thesis is divided into two parts: the first part deals with the carrier dynamics in semiconductor nanostructures, and the second part investigated the spin dynamics of bulk and semiconductor quantum rings.

In the first part, we investigate the carrier capture and relaxation processes in undoped and modulation-doped self-assembled InAs/GaAs QRs using time-resolved photoluminescence up-conversion spectroscopy with a time resolution of 200 fs. We find that carrier capture in the ground state and the excited states

of the charged QRs are faster in compared to the undoped rings even at a low excitation level. This is attributed to the presence of the build-in cold carriers in the charged rings, which lead to the accelerated carrier-carrier scattering and capturing of holes or electrons into the excited and ground states.

In the second part, we use a time-resolved photoluminescence polarization spectroscopy system to investigate the spin dynamics of electrons and holes in p-, n-, and undoped bulk GaAs. From the time-resolved polarization decay rate, we analyze the relative importance of spin relaxation mechanisms, including Elliott-Yafet (EY) model, D'yakonov-Perel (DP) model and Bir-Aronov-Pikus (BAP) model at room temperature for GaAs. We find that the spin relaxation time of the electrons is only on the order of a few tens of ps and the DP mechanism plays an important role for spin relaxation in bulk GaAs. In addition, the hole spin relaxation time is also determined with a rate of less than 300 fs. Finally, we study the spin dynamics in InAs/GaAs QRs in which a longer spin coherence time than the GaAs is predicted due to the three-dimensional quantum confinement. However, the spin relaxation time in excited and ground was found to be less than 1 ps. This is because that the carriers are excited above the barriers and they have to go through many cooling stages (such as, carrier-carrier, carrier-phonon, and inter-subband scatterings) before they can arrive at the excited or ground states in the ring, which leads to the observed ultrafast spin relaxation. The spin dynamics in quantum rings should be carefully re-examined by direct excitation of the carriers inside the rings.

Keywords : carrier dynamics , spin dynamics, InAs/GaAs quantum rings, bulk GaAs, spin relaxation mechanisms, carrier cooling stages

誌謝

兩年的研究所求學生涯轉眼間就過去，或許時間並不長久，但要感謝的人很多。首先最要感謝的是我的指導教授孫建文博士，給予學生悉心地指導與教誨，讓我受益匪淺，使本論文能夠順利地完成，也由於您的推薦函，讓我在畢業前就順利找到工作，無後顧之憂，在此獻上最真摯之謝意與敬意。另外要感謝兩位口試委員沈志霖教授與周武清教授，在口試的過程中指正與建議，使得本論文內容更臻完善，不勝感激。

回想起剛進入實驗室時，心中只有茫然與恐懼，感謝昭凱學長、秘書欣怡、柏帆學長及老陳學長帶領我熟悉這個陌生的環境，讓我不再感到無助。感謝靜宜學姐及 KB 學長在超快時間解析光譜的傳承，雖然我常問笨問題，但你們總是不厭其煩地教導我，並提供我許多寶貴的意見，實驗才得以順利進行，並祝福靜宜學姊完成妳的夢想，KB 學長研究順利，學弟們也要靠你了！謝謝昭凱如大哥般的照顧，你的嚴謹為人處事態度，實在讓我佩服；政元學長謝謝你平時的照顧，不論在研究或行事上皆指點我許多，祝福你與宇涵學姐幸福快樂；昱麟學長為人非常熱心且健談，也幫了我不少忙，並祝你順利畢業；老柯學長的脾氣很溫和，謝謝你在儀器上的教導，祝你偉大的研究計畫可以早日完成。再來是一起打拚的好夥伴們，孟勳為人非常風趣，謝謝你帶給實驗室許多歡笑，打牌時記得找我；詩翔雖然你常常少一根筋，但讓我見識到你天真的一面，也謝謝你替我跟孟勳收集考古題，讓

我們考試順利 pass，祝你們順利畢業！最後謝謝學弟們：志昇、允中、學亨及俊曄在口試上幫忙，允中也謝謝你替我組裝電腦；志昇與順發：時間解析就靠你們傳承了。

感謝在 Meta 會議上的各位教授，李建平老師、林聖迪老師、Alex 老師與孫允武老師，提供很多建議及導正我的觀念，讓我專業知識增進許多；同時也感謝電子所的大鈞學長、旭傑學長、依珊學姊與鄭濬，提供我專業上的協助。

感謝在求學歷程上受到師長們的提攜與照顧，顏伶瑜老師、李玉琪老師及蘇珀宏老師，您們對我總是特別的嚴格，不斷的鼓勵我，漸漸地將我在外遊蕩許久的心給收回來，下更多功夫在課業上，才會有今日的我，在此致上最深的感謝；也感謝一路上互相鼓勵與扶持的朋友們，宣孝、宜穎、晏德、孟俞、秉諺及智文等，宣孝謝謝妳在我實驗遇到挫折時，聽我抱怨與鼓勵我。

最後則由衷地感謝一路走來，始終陪伴著我的家人—爸爸、媽媽、哥哥、姊姊及姊夫，感謝您們默默地支持與付出，一直是最堅強的依靠，讓我勇於追求自己的夢想，不斷地成長與向前邁進，我愛你們！

如今論文的完成，代表的並不是結束，而是另一個新的開始。在此僅將本論文獻給關心我的家人、師長及朋友。

林新欽 謹誌于 交通大學應用化學系 2011 年 7 月

目錄

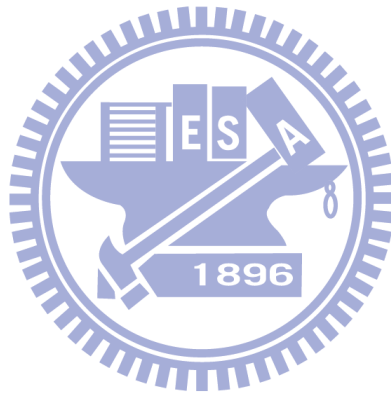
中文摘要.....	I
英文摘要.....	III
誌謝.....	V
目錄.....	VII
表目錄.....	X
圖目錄.....	XI
第一部份 三五族半導體的載子動力學.....	1
第一章 緒論.....	1
1-1 前言.....	1
1-2 量子點（環）文獻回顧.....	3
1-3 研究動機.....	7
1-4 參考文獻.....	8
第二章 半導體的光學躍遷與載子捕捉及鬆弛現象.....	9
2-1 半導體的光學躍遷.....	9
2-2 量子環內的載子捕捉及鬆弛現象.....	11
2-2-1 Barrier 層的載子的冷卻與鬆弛.....	12
2-2-2 雙極擴散.....	13
2-2-3 量子環的載子捕捉及鬆弛.....	14
2-2-4 量子環的電子與電洞複合.....	17
2-3 參考文獻.....	20
第三章 樣品介紹與實驗設備.....	21

3-1 樣品介紹.....	21
3-1-1 量子環的成長機制	21
3-1-2 量子環的製備流程	22
3-1-3 量子環的表面形貌	24
3-2 實驗設備介紹.....	28
3-2-1 共軛聚焦系統	28
3-2-2 Up-conversion 系統架設.....	29
3-3 參考文獻.....	37
第四章 實驗結果與討論.....	38
4-1 變激發通量之穩態螢光光譜分析	38
4-2 Modulation-doped InAs/GaAs QRs 之載子動力學	42
4-3 參考文獻.....	49
第五章 結論.....	50
第二部份 三五族半導體的自旋動力學.....	51
第一章 前言	51
1-1 緒論.....	51
1-2 文獻回顧.....	53
1-3 研究動機.....	56
1-4 參考文獻.....	57
第二章 自旋極化與自旋鬆弛機制.....	58
2-1 自旋極化的產生—光學取向.....	58
2-2 自旋軌道耦合.....	64

2-3 自旋鬆弛.....	65
2-3-1 Bloch 方程式.....	65
2-3-2 自旋鬆弛機制	67
2-4 參考文獻.....	74
第三章 樣品介紹與實驗設備.....	75
3-1 樣品介紹.....	75
3-2 實驗設備.....	76
3-2-1 偏極化的產生	76
3-2-2 自旋鬆弛時間解析系統架設	79
3-3 參考文獻.....	80
第四章 實驗結果與討論.....	81
4-1 體材料 GaAs 的自旋動力學.....	81
4-1-1 本質 GaAs 的自旋動力學.....	81
4-1-2 P 型 GaAs 的自旋電子動力學.....	85
4-1-3 N 型 GaAs 的自旋電洞動力學	90
4-2 Modulation-doped InAs/GaAs QRs 的自旋動力學	100
4-3 參考文獻.....	106
第五章 結論.....	107

表目錄

表 3.1 量子環的大小	27
表 3.2 不同的相位匹配條件	34
表 4.1 室溫下，不同量子環的各能帶放光峰值位置	40
表 2.1 導帶與價帶波函數整理表	60
表 3.1 光的偏振態轉換	78
表 4.1 本質 GaAs 在不同激發密度的自旋鬆弛時間	84



圖目錄

圖 1.1 摩爾定律.....	1
圖 1.2 不同維度的材料比較.....	2
圖 1.3 量子點雷射.....	4
圖 1.4 未摻雜、n 摻雜及 p 摻雜量子點的載子上升過程.....	4
圖 1.5 將光分別激發在 barrier 及 WL，不同能階的 PL 上升時間.....	5
圖 1.6 量子點與量子環在不同溫度下的螢光生命期.....	5
圖 1.7 量子環載子鬆弛模型及實驗數據擬合.....	6
圖 2.1 電磁波與半導體的交互作用.....	10
圖 2.2 量子環的載子捕捉及鬆弛過程.....	11
圖 2.3 載子的釋熱過程.....	13
圖 2.4 雙極擴散係數與溫度的關係.....	14
圖 2.5 歐傑散射過程.....	15
圖 2.6 量子點能階吸收光譜圖.....	16
圖 2.7 Cross-transition 吸收示意圖.....	16
圖 2.8 不同激發能量的載子鬆弛過程.....	17
圖 2.9 量子環內載子捕捉及鬆弛過程的理論模型.....	19
圖 3.1 自組裝 InAs 量子點的成長過程.....	21
圖 3.2 自組裝 InAs 量子環的成長過程.....	22
圖 3.3 自組裝未摻雜 InAs / GaAs 量子環的結構圖.....	23
圖 3.4 p 及 n 摻雜 InAs / GaAs QRs 的結構圖.....	24
圖 3.5 AFM 的操作原理.....	25
圖 3.6 未摻雜量子環的 AFM 圖.....	26
圖 3.7 n 摻雜量子環的 AFM 圖.....	26
圖 3.8 p 摻雜量子環的 AFM 圖.....	27

圖 3.9 共軛聚焦原理.....	28
圖 3.10 光電場通過介質之感應極化過程.....	29
圖 3.11 二階非線性輸出訊號 (a) SFG (b) DFG (c) SHG.....	31
圖 3.12 光電場進入晶體產生兩道偏振光.....	33
圖 3.13 非線性晶體 (a) 正單光軸 (b) 負單光軸.....	33
圖 3.14 入射光以 θ 角進入非線性晶體 (a)立體圖 (b)平面圖.....	34
圖 3.15 相位匹配型式 (a) Type I (b) Type II.....	34
圖 3.16 Up-conversion 系統的架設圖.....	35
圖 3.17 Up-conversion 內部光學系統的架設圖.....	36
圖 3.18 (a) SFG 訊號的輸出 (b) 時間解析光譜.....	36
圖 4.1 室溫下，未摻雜量子環的穩態螢光光譜.....	39
圖 4.2 室溫下，n 摻雜量子環的穩態螢光光譜.....	39
圖 4.3 室溫下，p 摻雜量子環的穩態螢光光譜.....	40
圖 4.4 未摻雜量子環的穩態螢光光譜.....	41
圖 4.5 n 摻雜量子環的穩態螢光光譜.....	41
圖 4.6 p 摻雜量子環的穩態螢光光譜.....	42
圖 4.7 未摻雜量子環在不同能帶的時間解析光譜.....	43
圖 4.8 n 摻雜量子環在不同能帶的時間解析光譜.....	43
圖 4.9 p 摻雜量子環在不同能帶的時間解析光譜.....	44
圖 4.10 未摻雜量子環的激發態螢光捕捉時間解析光譜.....	44
圖 4.11 n 摻雜量子環激發態的螢光捕捉時間解析光譜.....	45
圖 4.12 p 摻雜量子環激發態的螢光捕捉的時間解析光譜.....	45
圖 4.13 未摻雜量子環基態的螢光捕捉時間解析光譜.....	46
圖 4.14 n 摻雜量子環的基態螢光捕捉時間解析光譜.....	46
圖 4.15 p 摻雜量子環的基態螢光捕捉時間解析光譜.....	47

圖 4.16 量子環螢光上升時間 (a) 激態 (b) 基態	48
圖 1.1 自旋場效電晶體.....	52
圖 1.2 Datta –Das 記憶體.....	54
圖 1.3 n 型三五族半導體.....	54
圖 1.4 p 型三五族半導體.....	54
圖 1.5 電子與電洞的鬆弛時間解析圖.....	55
圖 1.6 不同摻雜量子點的鬆弛時間解析圖.....	55
圖 2.1 GaAs 的光學取向.....	59
圖 2.2 電洞鬆弛時間解析量測示意圖.....	62
圖 2.3 電洞鬆弛時間解析結果.....	62
圖 2.4 電子與電洞複合放光.....	63
圖 2.6 自旋鬆弛時間	66
圖 2.7 自旋回聲實驗.....	66
圖 2.8 自旋鬆弛三大機制.....	67
圖 2.9 EY 散射示意圖.....	69
圖 2.10 自旋耦合導致自旋翻轉.....	69
圖 2.11 DP 鬆弛機制.....	71
圖 3.1 不同型式的偏振光.....	77
圖 3.2 雙折射晶體座標圖	78
圖 3.3 自旋極化鬆弛時間解析系統.....	79
圖 3.4 四分之一波片	80
圖 4.1 (a)本質 GaAs 時間解析光譜 (b)對應(a)之自旋極化率鬆弛過程.....	82
圖 4.2 本質 GaAs 之自旋極化率擬合曲線.....	82
圖 4.3 本質半導體在不同激發密度下，自旋極化率的擬合曲線	83
圖 4.4 本質 GaAs 在不同激發密度的自旋鬆弛時間	83

圖 4.5	p-GaAs 的自旋極化擬合曲線 (a)長程(150 ps) (b)短程(5 ps)	86
圖 4.6	p-GaAs 在不同激發密度的初始自旋極化率	87
圖 4.7	p-GaAs 以 σ^+ 光激發過程	87
圖 4.8	p-GaAs 輻射複合過程	88
圖 4.9	p-GaAs 在不同激發密度的自旋鬆弛時間	89
圖 4.10	$n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的 n-GaAs 之自旋極化率的擬合曲線	90
圖 4.11	$n_e = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 n-GaAs 之自旋極化率擬合曲線	91
圖 4.12	時間為 1ps 時 n-GaAs 的自旋極化率數值	91
圖 4.13	n-GaAs 以 σ^+ 光激發過程	93
圖 4.14	n-GaAs 輻射複合過程	93
圖 4.15	$n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 的自旋鬆弛時間	95
圖 4.16	$n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 的自旋鬆弛時間	96
圖 4.17	高簡併系統的散射過程	97
圖 4.18	(a) n-GaAs 時間解析光譜 (b)自旋鬆弛時間解析光譜	99
圖 4.19	n-GaAs 的自旋極化率擬合曲線	99
圖 4.20	barrier 的自旋鬆弛解析光譜(a)長程(150 ps) (b)短程(5 ps)	102
圖 4.21	量子環中 WL 之自旋鬆弛時間解析光譜	103
圖 4.22	量子環中激發態之自旋鬆弛時間解析光譜	103
圖 4.23	量子環中基態之自旋鬆弛時間解析光譜	104
圖 4.24	量子環中不同能帶的自旋鬆弛時間	104
圖 4.25	量子環中不同能帶的自旋極化率	105

第一部份 三五族半導體的載子動力學

第一章 緒論

1-1 前言

隨著半導體技術的發展，「微電子」也逐漸被「奈米電子」所取代。摩爾宣稱，“每十八個月在相同尺寸的晶片上，電晶體的容量將呈倍數成長”，即所謂的“摩耳定律”，如圖 1.1 所示 [1.1]。奈米電子時代的來臨，未來的 IC 大部分會由奈米技術做成，但是為了達到奈米的要求，製程複雜度增加，當通道長度微縮至十奈米以下會面臨材料的物理極限，絕緣層會因量子穿隧效應而導通電子，因此開發新的材料或研發新的先進製程勢在必行。

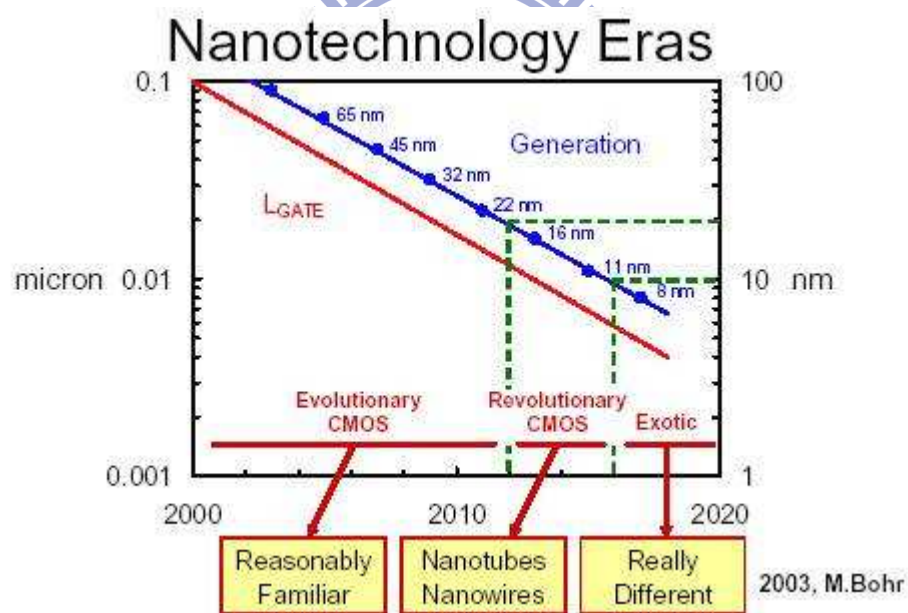


圖 1.1 摩爾定律

近年來許多學者相繼提出各種新穎的材料，如利用自組裝技術所製造的量子點[1.2-1.3]。如圖所示[1.4]，塊材（Bulk）的能階是連續的，電子可在三維空間自由活動，當材料微縮奈米等級時（尺寸介於1-100奈米之間），電子的行為發生改變，電子活動就會受到侷限，若電子只有一個維度侷

限，則稱為量子井 (Quantum well, QW)，二維侷限稱為量子線 (Quantum wire)，而電子在三維都受到侷限的話，即所謂的量子點 (Quantum dot, QD)，其能階密度變成離散的 δ 函數型式，類似於原子的不連續能階，當微縮至物理極限 (10 nm) 時，量子侷限效應更佳，可控制單一電子的進出，有利於單電子電晶體的發展，甚至利用自旋維度，來儲存訊號。

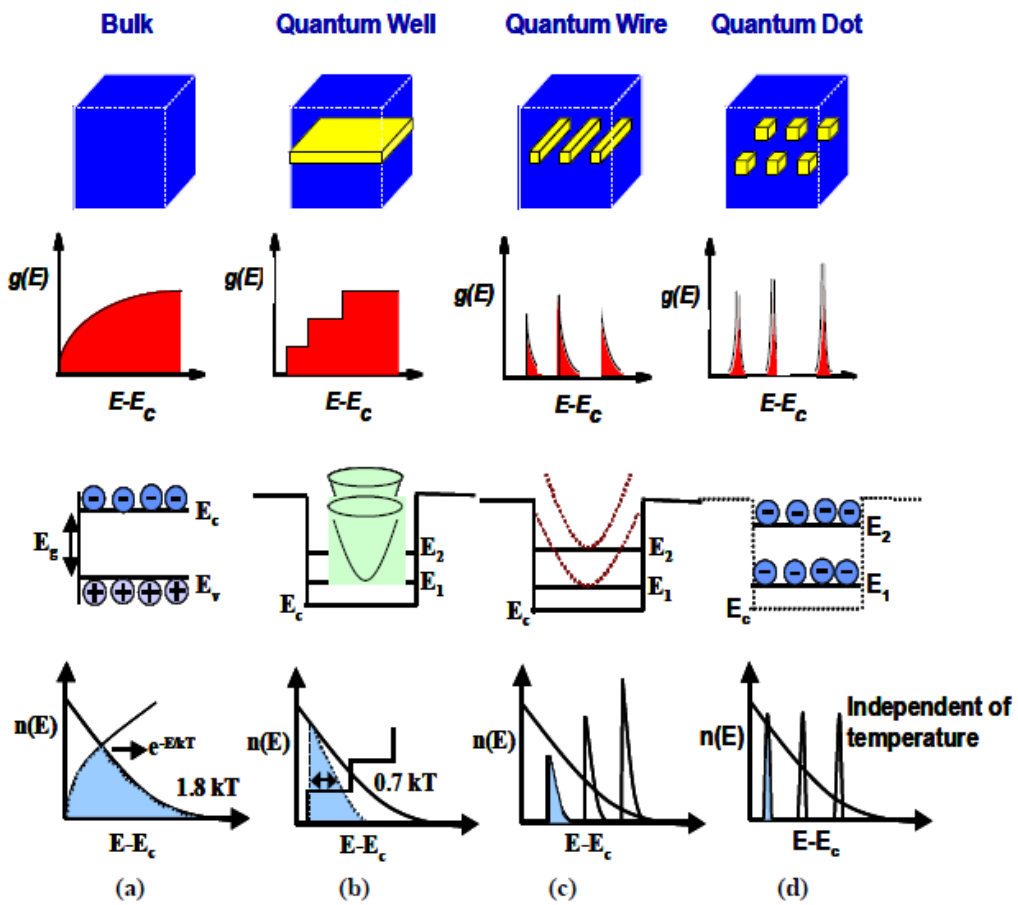


圖 1.2 不同維度的材料比較

量子點的製備主要有 Ex-situ 與 In-situ 兩種，Ex-situ 成長品質容易在異質介面處產生大量缺陷，成長品質難以控制，因此大部分都採用 In-situ 的方法，In-situ 中又以自組裝成長 (self-assembled growth) 技術最為純熟，自組裝技術是利用異質薄膜接面的晶格不匹配，導致在界面的應變 (strain) 加速上升，為了降低系統的總能量，而自發地長出點狀或島狀的結構。隨著量子點成長技術的純熟，而發展出成長量子環 (Quantum ring, QRs) 的

方法 [1.5-1.7]，量子環有著如火山口的環狀對稱結構，與量子點同是零維的結構，有其獨特的特性，如 Aharonov-Bohm 效應[1.8-1.9]、永久電流 (persistent current)、磁化(magnetization) 性質等。

1-2 量子點 (環) 文獻回顧

由於量子點的應用潛力，隨著成長技術的純熟，已有非常廣泛的用途，如圖 1.3 的量子點雷射、紅外線偵測器等 [1.10-1.11]。

對於超快電子元件來說，半導體的載子的捕獲速率扮演非常重要的角色，利用超快時間解析光譜可以快速地了解半導體的載子動態特性。而量子點的載子動力學已被廣泛的研究，D. Morris 等人利用 Up-conversion 系統研究 InAs / GaAs 量子點的載子動力學，在不同波長、激發密度的雷射光源條件下，發現量子點的載子捕捉速率與激發密度呈正相關，稱之為歐傑過程 (Auger process) [1.12]。 S. Marcinkevicius 等人利用了 Streak Camera 的系統在低激發密度下，由於多聲子過程 (multi-phonon process) 參與量子點能量鬆弛，使得量子點載子捕捉速率仍比預期的快[1.13]。如圖 1.4 所示，K. Gundogdu 等人比較了本質與摻雜量子點載子的動態機制，發現摻雜量子點的內建的載子提升載子-載子散射速率，加速載子的鬆弛速率 [1.14]。如圖 1.5 所示，J. Siegert 等人為了釐清載子的傳輸、捕捉及鬆弛過程的差異，將光分別激發在能障 (barrier)及潤濕層 (wetting layer, WL)，成功量測到純的載子捕捉時間[1.15]。K. W. Sun 發現摻雜電子與電洞的量子點在低激發強度下，具有相同的載子捕捉速率，並利用電偶極的概念以理論計算驗證[1.16]。

C. H. Lin 及 K. W. Sun 等人首先發表 InAs / GaAs 量子環載子動力學的研究成果，如圖 1.6 及圖 1.7，發現量子環的不發光能階 (dark state) 參與載子鬆弛過程，使得在高溫下的載子生命期遠比量子點長[1.17]。

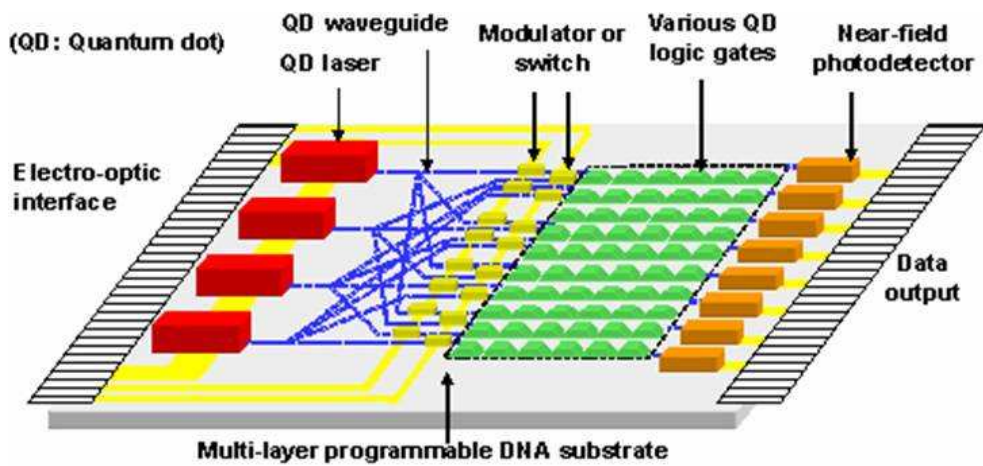


圖 1.3 量子點雷射

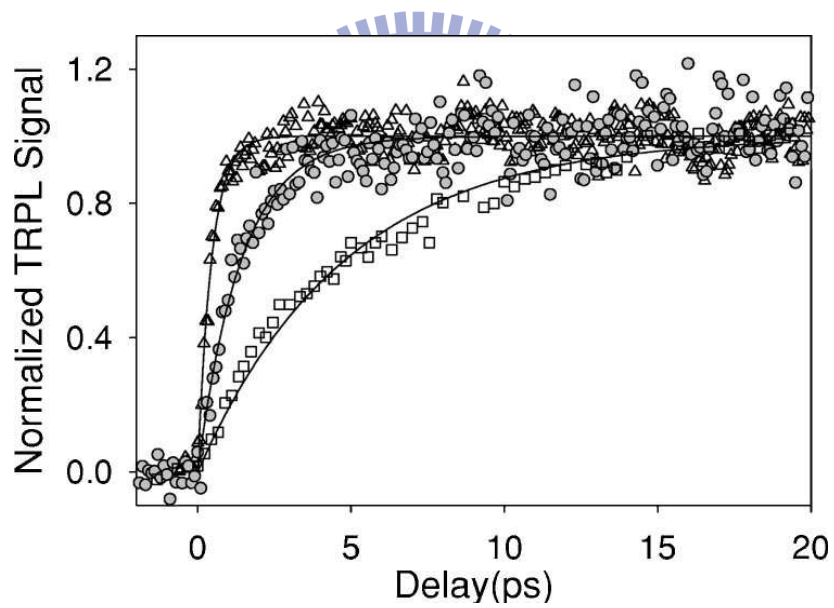


圖 1.4 未摻雜、n 摻雜及 p 摻雜量子點的載子上升過程

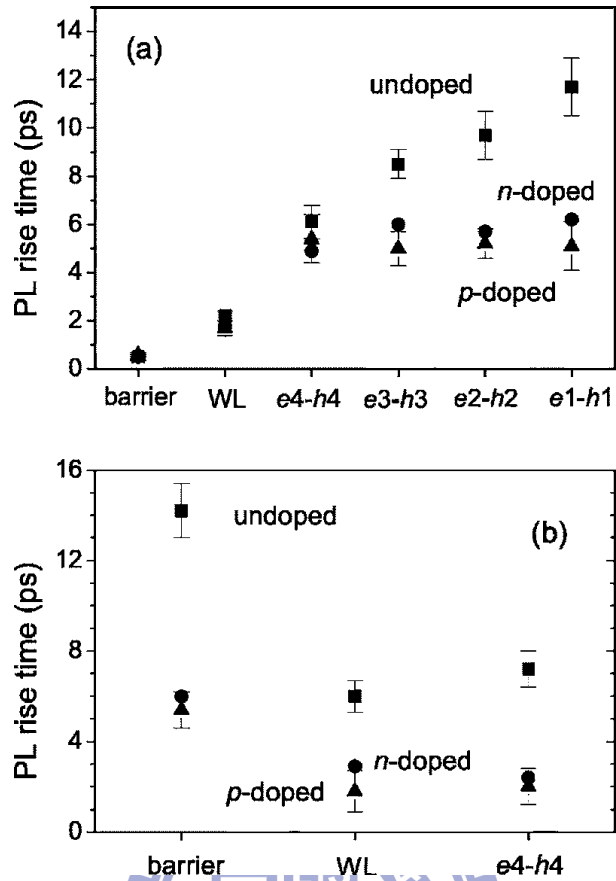


圖 1.5 將光分別激發在 barrier 及 WL，不同能階的 PL 上升時間

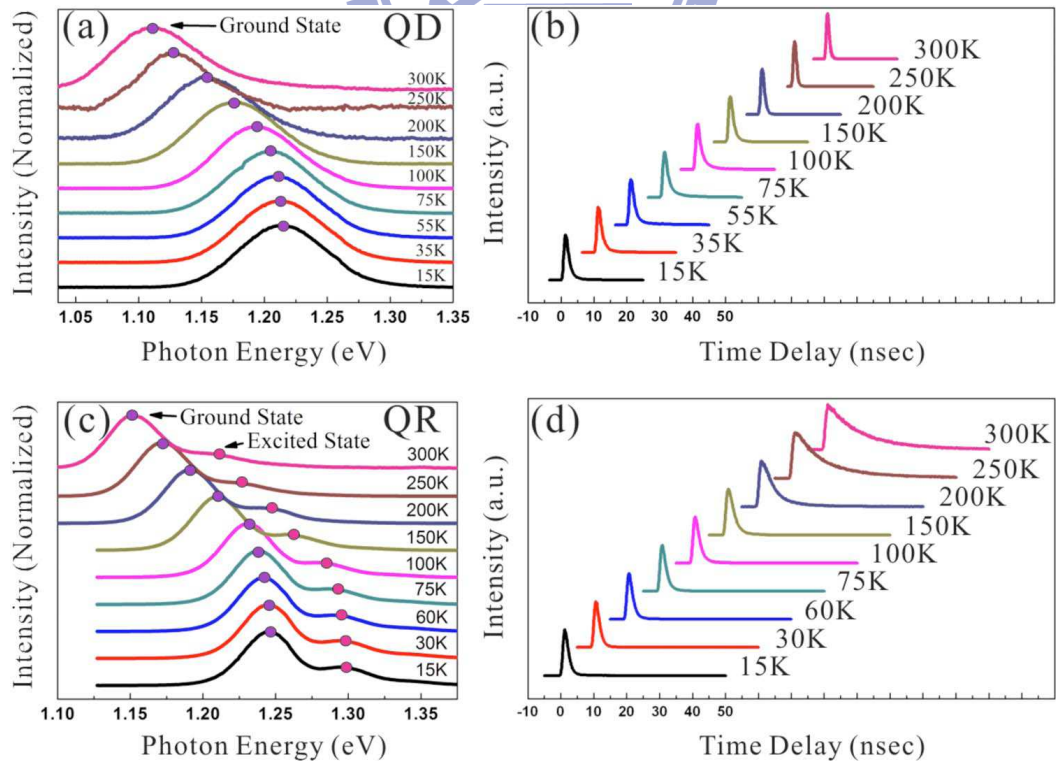


圖 1.6 量子點與量子環在不同溫度下的螢光生命期

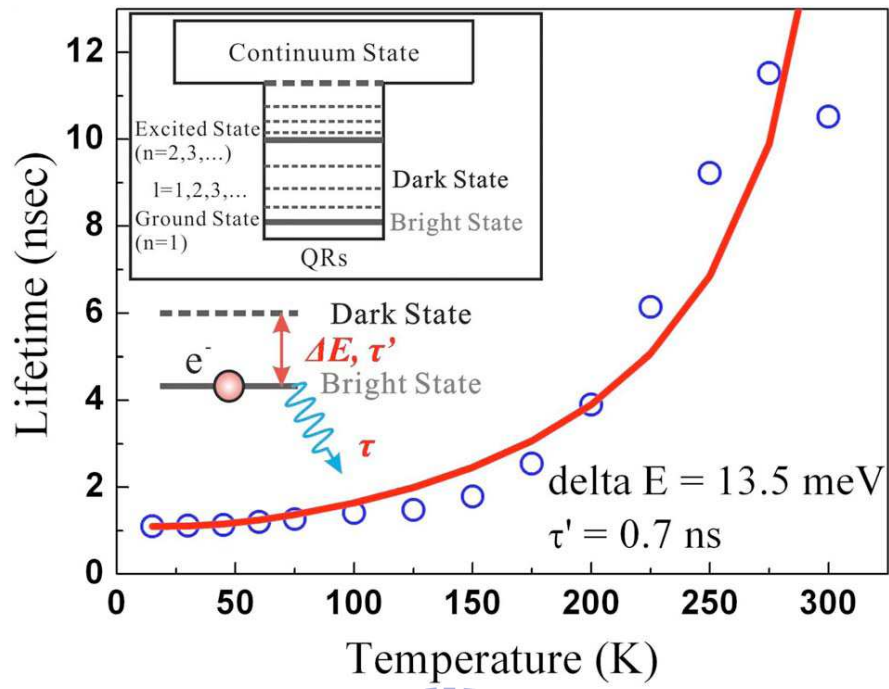


圖 1.7 量子環載子鬆弛模型及實驗數據擬合



1-3 研究動機

傳統的矽基材電子元件已逐漸趨近於物理極限，絕緣層會因量子穿隧效應而導通電子，因此開發具有量子效應的奈米電子元件勢在必行。

尋找適合量子元件應用的材料是首要條件，具有如火山口環狀對稱結構的量子環，引起我們研究的興趣，與量子點同為零維度的材料，有其獨特的特性，如 Aharonov-Bohm 效應[1.8-1.9]、永久電流(persistent current)、磁化(magnetization) 性質等。

而量子環相較量子點發展時間較晚，對量子環的理論基礎相對缺乏。摻雜載子的量子點已有紅外偵測器、單電子電子元件等應用，因此藉由超快時間解析系統，系統地了解摻雜量子環的載子動態過程，期望能發現量子環比量子點更適合元件應用的特性。

1-4 參考文獻

- [1.1] International Technology Roadmap for Semiconductors (2003).
- [1.2] J. Tersoff, et al. Phys. Rev. Lett. 76, 1675 (1996).
- [1.3] I. Daruka, et al. Phys. Rev. Lett. 82, 2753 (1999).
- [1.4] SANJAY KRISHNA , Optoelectronic Properties of Self-Assembled InAs/InGaAs Quantum Dots.
- [1.5] 林聖迪,「零維半導體量子結構之製作與物理性質」, 物理雙月刊, 三十卷六期, 625-630頁, 2008年12月。
- [1.6] H.-S. Ling and C.-P. Lee, J. Appl. Phys. 102, 024314 (2007).
- [1.7] D. Granados, J. M. Garcia, T. Ben, and S. I. Molina, Appl. Phys. Lett. 86, 071918 (2005).
- [1.8] M. Grochol, F. Grosse, and R. Zimmermann, Phys. Rev. B. 74, 115416 (2006).
- [1.9] V. M. Fomin, V. N. Gladilin, S. N. Klimin, and J. T. Devreese N. A. J. M. Kleemans and P. M. Koenraad, Phys. Rev. B. 76, 235320 (2007).
- [1.10] uWee Photonics Lab
- [1.11] H. C. Liu, M. Gao, J. McCaffrey, Z. R. Wasilewski, and S. Fafard, Appl. Phys. Lett. 78, 79 (2001).
- [1.12] D. Morris and N. Perret, Appl. Phys. Lett. 75, 3593 (1999).
- [1.13] R. Heitz, M. Veit, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, and D. Bimberg , V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, and Zh. I. Alferov, Phys. Rev. B. 56, 10437 (1997).
- [1.14] K. Gundogdu, et al. Appl. Phys. Lett. 85, 4570 (2004).
- [1.15] J. Siegert, Phys. Rev. B. 72, 085316 (2005).
- [1.16] K. W. Sun, A. Kechiantz, B. C. Lee, C. P. Lee, Appl. Phys. Lett. 88, 163117 (2006).
- [1.17] C. H. Lin, H. S. Lin, C. C. Huang, S. K. Su, S. D. Lin, K. W. Sun, C. P. Lee, Y. K. Liu, M. D. Yang, and J. L. Shen, Appl. Phys. Lett. 94, 183101 (2009).

第二章 半導體的光學躍遷與載子捕捉及鬆弛現象

2-1 半導體的光學躍遷

如圖 2.1 所示，當光電磁波 $E = E_0 \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r} - i\omega t)$ 激發半導體與電子產生交互作用，電子從初態 i 至末態的躍遷機率 (transition probability) 由費米黃金定律 (Fermi golden rule) 定義為

$$W_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle f | H_{\text{int}} | i \rangle \right|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega), \quad (2.1)$$

其中 $|i\rangle$ 與 $|f\rangle$ 分別表示初狀態與末狀態， H_{int} 是光電磁波與電子交互作用的漢米爾頓算符 (Hamiltonian operator)

$$H_{\text{int}} = \frac{1}{2m_0} (\vec{p} + e\vec{A})^2 + V(\vec{r}), \quad (2.2)$$

$$\Rightarrow H_{\text{int}} = \left(\frac{\vec{p}^2}{2m_0} + V(\vec{r}) \right) + \left[\frac{e^2 \vec{A}^2}{2m_0} + \frac{e}{2m_0} (\vec{p} \cdot \vec{A} + \vec{A} \cdot \vec{p}) \right] = H_0 + H', \quad (2.3)$$

由電磁波產生的 Hamiltonian 微擾項為

$$H' = \frac{e^2 \vec{A}^2}{2m_0} + \frac{e}{2m_0} (\vec{p} \cdot \vec{A} + \vec{A} \cdot \vec{p}), \quad (2.4)$$

假設非線性效應 \vec{A}^2 可忽略且 $\vec{p} \cdot \vec{A} = 0$ (Coulomb gauge: $\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0$)，式 2.4 簡化為

$$H' = \frac{e}{2m_0} \vec{A} \cdot \vec{p}, \quad (2.5)$$

令
$$\vec{E} = -\frac{\partial \vec{A}}{\partial t}, \quad \vec{A} = A_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}, \quad (2.6)$$

且
$$\exp(\vec{k} \cdot \vec{r}) = 1 + ikr + 1/2(ikr)^2 + \dots, \quad (2.7)$$

由偶極近似 (Dipole approximation) : $r \sim 10^{-9} \text{ m}, k \sim 2\pi/\lambda \sim 6 \times 10^6$, 則

$$\exp(\vec{k} \cdot \vec{r}) \sim 1 \Rightarrow \vec{A} = A_0 \vec{a} = \sqrt{\frac{\hbar}{2\epsilon\omega}} \cdot e^{-i\omega t}, \quad (2.8)$$

因此電子吸收一個光子後的轉移機率 (速率) 為

$$W_{i \rightarrow f}^{\text{abs}} = \frac{2\pi}{\hbar} \left(\frac{\hbar}{2\epsilon\omega} \right) \frac{e^2}{m_0^2} |\langle f | \vec{a} \cdot \vec{p} | i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega), \quad (2.9)$$

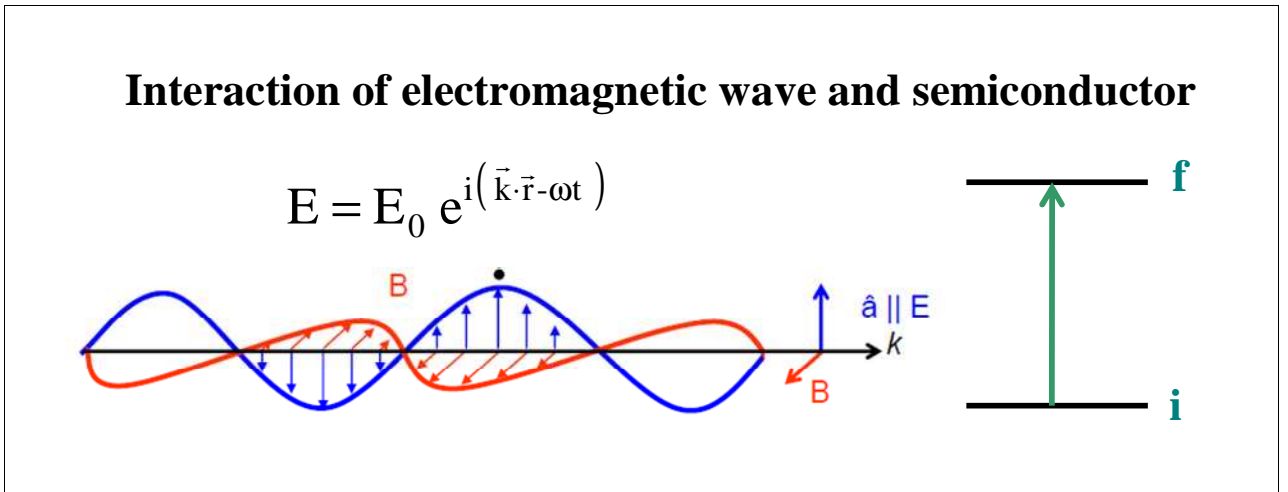


圖 2.1 電磁波與半導體的交互作用 [2.1]

2-2 量子環內的載子捕捉及鬆弛現象

如圖2.2所示，當一入射光激發至 GaAs barrier 連續能態上，此時價帶的束縛電子獲得光子的能量，躍遷至導帶成自由電子，而量子環的載子捕捉與鬆弛過程主要分為五個步驟：(i) 在 barrier 能帶上，載子的冷卻與鬆弛；(ii) 載子由 barrier 往 WL 的方向行雙載子擴散 (ambipolar diffusion)；(iii) 載子從 barrier 捕捉至 WL，再從 WL 進入 QRs；(iv) 在 QRs 的分立能階間行載子鬆弛過程；(v) 量子環內的電子、電洞行輻射複合 (radiative recombination) 發光或非輻射複合 (non-radiative recombination) 放熱[2.2]。

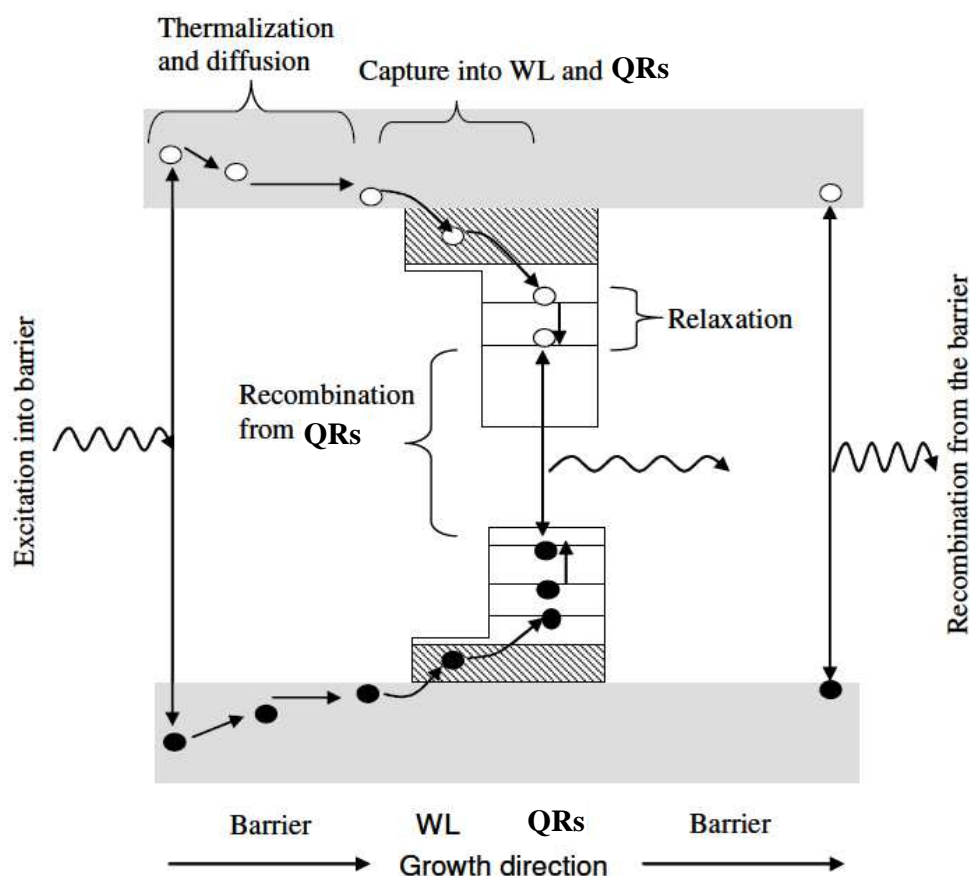


圖 2.2 量子環的載子捕捉及鬆弛過程

2-2-1 Barrier 層的載子的冷卻與鬆弛

了解載子的冷卻機制 (cooling mechanism) 是相當重要的，尤其是對於以在高電場操作下的超快光電元件。

當半導體在高電場中的傳導時，當電子之平均動能高於其熱平衡值 ($\frac{3}{2}k_B T_L$, k_B : Boltzmann 常數)，即稱為熱電子[2.3]。在有外力擾動的影響下，如在施加電場或光激發後，其電子並非處於熱平衡下的分佈函數，而無法經由溫度的關係表示，稱之為”nonthermal”。

如圖2.3所示，當超快雷射激發能量高於 GaAs barrier 能隙，產生許多熱載子，這些熱載子就開始進行釋熱過程，共分為四個過程 [2.4]:

- (1) 同相程序 (coherent process): 當經過一束超快脈衝光激發後，產生的熱載子的相位分佈會持續一段與入射光同相的時間，這段時間的態可用矩陣來表示之，去相時間 (dephase time) 大約為100飛秒甚至更短。
- (2) 非熱平衡程序 (non-thermal process): 在經過同相過程後，開始熱平衡的程序，經由載子-載子散射 (carrier-carrier scattering) 使得電子與電洞進行能量與動量交換，而達到熱平衡，此時電漿溫度為 T_c ，這段時間約 2皮秒。
- (3) 熱載子程序 (hot carrier process): 此時電漿溫度 T_c 仍高於晶格溫度 T_L ，電漿藉由與聲子 (LO、LA) 的交互作用來釋放能量，這段時間約為 1-100皮秒。
- (4) 絕熱程序 (isothermal process) 接著電子、電洞會經由輻射或非輻射複合，將載子溫度由 T_c 降至 T_L ，使系統達到熱平衡。這段時間超過 1奈秒。

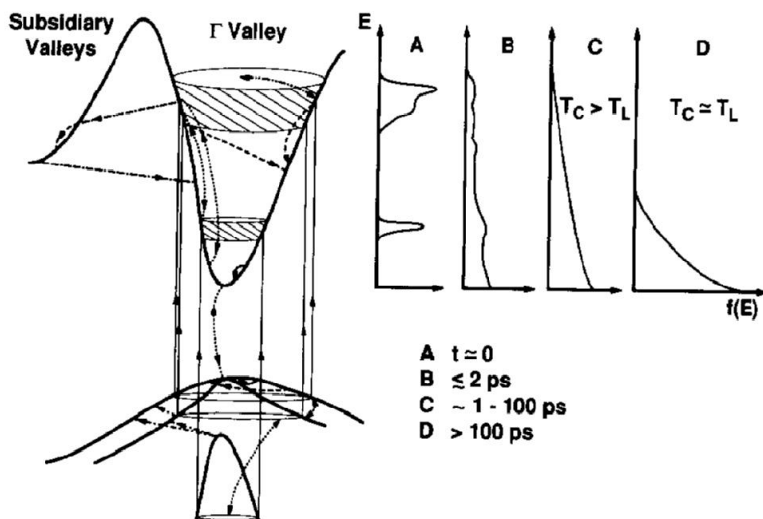


圖 2.3 載子的釋熱過程 [2.5]

2-2-2 雙極擴散

當光激發能量高於 barrier 層的能隙時，產生的電子電洞對有一小部份會直接複合 (recombination)，而大部分的載子會由 barrier 往 WL 的方向擴散，然後被 WL 捕捉。舉例來說，當光激發本質 barrier 層，產生等量的電子電洞數目，但由於電子與電洞的擴散係數不同，導致電子與電洞的遷移率也不同，電子與電洞的不均勻分佈形成內建電場，而產生擴散，此種結合電子與電洞的擴散效應稱為雙極擴散 (ambipolar diffusion)，而雙極擴散係數表示為 [2.2][2.6]

$$D_a = 2 \frac{D_e D_h}{D_e + D_h}, \quad (2.10)$$

其中 D_e 、 D_h 分別為電子與電洞的擴散係數 (diffusivity)。

由愛因斯坦關係式 (Einstein relation)

$$D_e = \left(\frac{k_B T}{q} \right) \mu_e \quad \text{and} \quad D_h = \left(\frac{k_B T}{q} \right) \mu_h, \quad (2.11), (2.12)$$

其中 μ_e 、 μ_h 分別為電子與電洞的遷移率 (mobility)。

將式2.11代入式2.10，整理得

$$D_a = \frac{\mu_e \mu_h}{\mu_e + \mu_h} \left(\frac{2k_B T}{q} \right), \quad (2.13)$$

利用 pump-probe 系統量測與理論計算 bulk GaAs 的雙極擴散常數，如圖2.4所示，可以發現雙極擴散常數隨著溫度的增加呈現反比的關係。

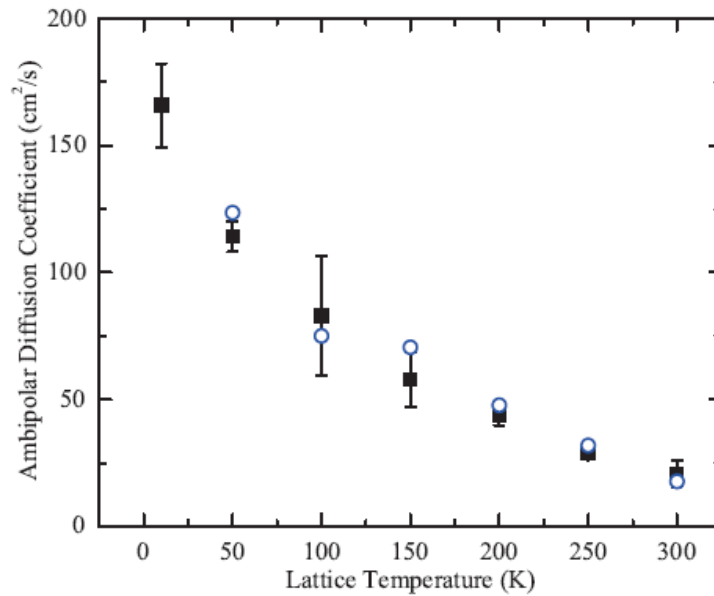


圖 2.4 雙極擴散係數與溫度的關係 [2.7]

2-2-3 量子環的載子捕捉及鬆弛

對於三維的 barrier 層，具有連續的能帶，可以藉由聲子（LO、LA）傳遞能量，因此載子的鬆弛相當快速。但對於零維的量子環，電子活動受到量子侷限，導致能量狀態為不連續能階，在量子環中主要有兩種載子的鬆弛過程，(1) 載子從連續能帶鬆弛至量子環中的侷限能階；(2) 載子從量子環中較高的侷限能階鬆弛至較低的能階（基態）。第一個鬆弛過程會比第二個快，這是由於載子鬆弛必須滿足能量守衡，兩個侷限能階很難是 LO 聲子的能量整數倍，必須藉由 LA 聲子緩慢地釋放能量，載子會停留在較高的侷限能階較長的時間，此現象稱之為聲子瓶頸（phonon bottleneck）[2.8-2.10]。

但實際上，載子鬆弛時間只有數十皮秒（picosecond），顯然有其他機制被忽略，這是由於有兩種機制克服聲子瓶頸的現象，依激發密度大小分類，當處於高激發密度時，如圖2.5 所示，鬆弛機制由歐傑過程所主宰，隨著載子密度的增加，提升載子間的散射機率，載子可藉由相互的作用傳遞能量，達到載子鬆弛[2.11-2.12]。當處於低激發密度時，載子可以藉由準連續能帶釋放聲子來達到鬆弛，所謂的準連續能帶（quasi-continuum）是 cross-transition 的吸收光譜[2.13]，如圖2.6 所示，其中吸收光譜包含：(1) 價帶的 WL 電洞能帶（WLh）至導帶的第一個分立電子能階（1Se），稱之為 WLh-1Se 轉移；(2) 價帶的第一個電洞分立能階（1Sh）至價帶的 WL 電子能帶（WLe），稱之為 1Sh-WLe 轉移，如圖2.7 所示。因此量子環的結構中，除了分立能階與連續能帶，還會有準連續能帶的存在。當激發能量高於量子環的第三個分立能階，如圖2.8 (a) 所示，此時激發載子先藉由 LA 聲子的放射鬆弛至準連續能帶，然後載子經由多 LO 聲子（multi-LO phonon）放射鬆弛至基態。當激發能量位於第三個分立能階，如圖2.8 (b)，由於分立能階與準連續能帶重疊，會加強光子的吸收，與圖2.9 (a) 一樣，先藉由 LA 聲子的放射，然後再經由多 LO 聲子的放射來達到能量鬆弛[2.14]。

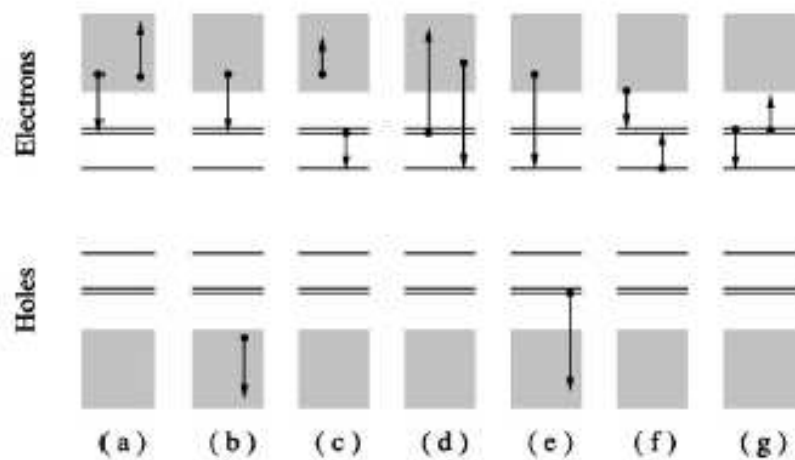


圖 2.5 歐傑散射過程

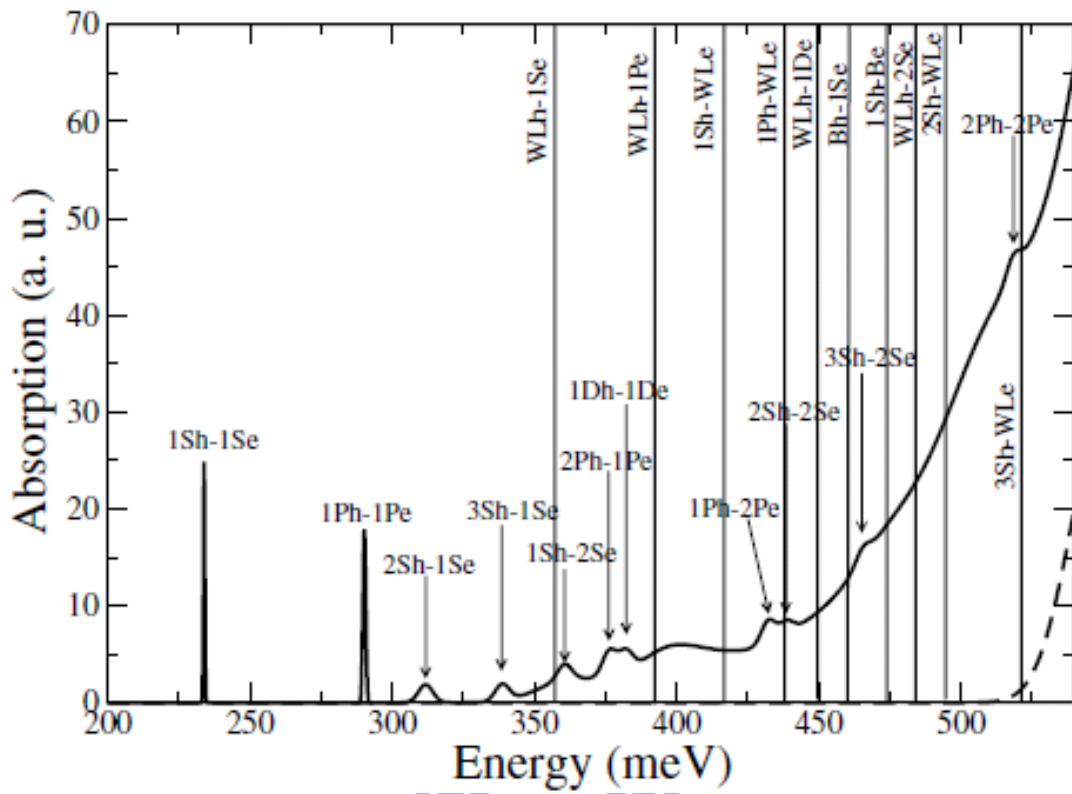


圖 2.6 量子點能階吸收光譜圖

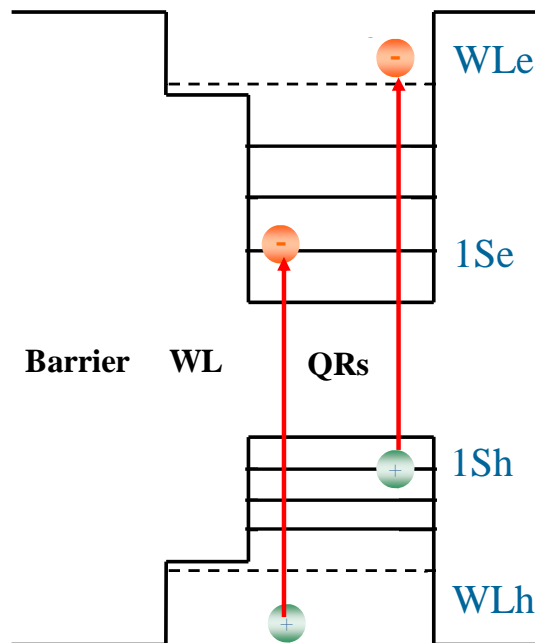


圖2.7 Cross-transition 吸收示意圖

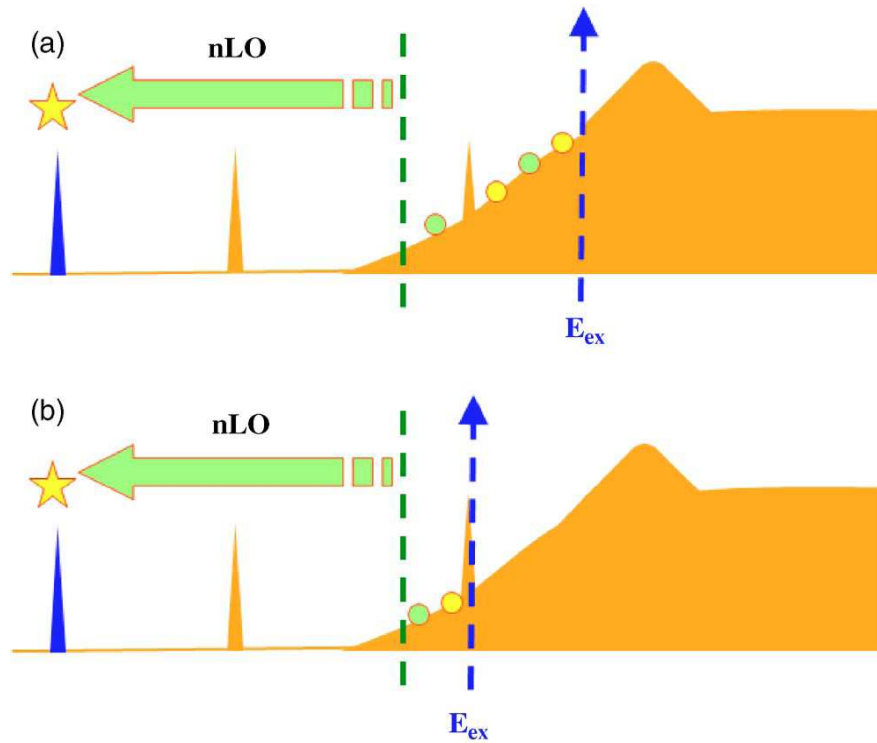


圖 2.8 不同激發能量的載子鬆弛過程

2-2-4 量子環的電子與電洞複合

量子環內的電子與電洞行輻射複合 (radiative recombination) 發光或非輻射複合 (non-radiative recombination) 放熱，而 PL 的發光強度與前述載子捕捉及鬆弛的機制密切相關。如圖2.9所示，為光激發量子環後，載子的傳輸過程模型，假設低激發強度，因此可忽略狀態填充效應 (state filling effect)，則速率方程式為[2.15]

$$\frac{dn}{dt} = -\frac{n}{\tau} - \frac{n}{\tau_e} + \frac{n_w}{\tau_c}, \quad (2.14)$$

$$\frac{dn_w}{dt} = -\frac{n_w}{\tau_w} - \frac{n_w}{\tau_c} - \frac{n_w}{\tau_{ew}} + \frac{n}{\tau_e} + \frac{n_g}{\tau_{cw}}, \quad (2.15)$$

$$\frac{dn_g}{dt} = -\frac{n_g}{\tau_g} - \frac{n_g}{\tau_{cw}} + \frac{n_w}{\tau_{ew}} + g, \quad (2.16)$$

其中

n 、 n_w 、 n_b 分別為量子環、WL、barrier 的載子平均數目

τ_c 是載子由 WL 捕獲至量子環的時間常數

τ_e 是載子由量子環逃脫至 WL 的時間常數

τ_{cw} 是載子由 barrier 捕獲至 WL 的時間

τ_{ew} 是載子由 WL 逃脫至 barrier 的時間

τ_w 、 τ_g 分別是 WL 和 barrier 的載子生命期

解式 2.14-2.16 的聯立暫態速率方程式，可以求得量子環的螢光積分強度

$$I = \frac{n}{\tau} = g \left[\left(1 + \frac{\tau_{cw}}{\tau_g} \right) \left(1 + \frac{\tau_c}{\tau_w} + \frac{\tau}{\tau_w} R \right) + \frac{\tau_c}{\tau_g} R + \frac{\tau}{\tau_g} R_w R \right]^{-1}, \quad (2.17)$$

其中

$$R = \frac{\tau_c}{\tau_e} \quad \text{且} \quad R_w = \frac{\tau_{cw}}{\tau_{ew}}, \quad (2.18), (2.19)$$

在所有溫度下， $\frac{\tau_{cw}}{\tau_g} \ll 1$ ， $\frac{\tau_c}{\tau_w} \ll 1$ ，簡化式 2.17 得

$$I = \frac{n}{\tau} = g \left[1 + \frac{\tau}{\tau_w} R + \frac{\tau_c}{\tau_g} R + \frac{\tau}{\tau_g} R_w R \right]^{-1}, \quad (2.20)$$

在低溫時， $R \approx R_w \approx 0$ ，得低溫 PL 強度 $I_o \approx g$ ，代入式 2.30 得

$$I = \frac{n}{\tau} = I_o \left[1 + \frac{\tau}{\tau_w} R + \frac{\tau_c}{\tau_g} R + \frac{\tau}{\tau_g} R_w R \right]^{-1}, \quad (2.21)$$

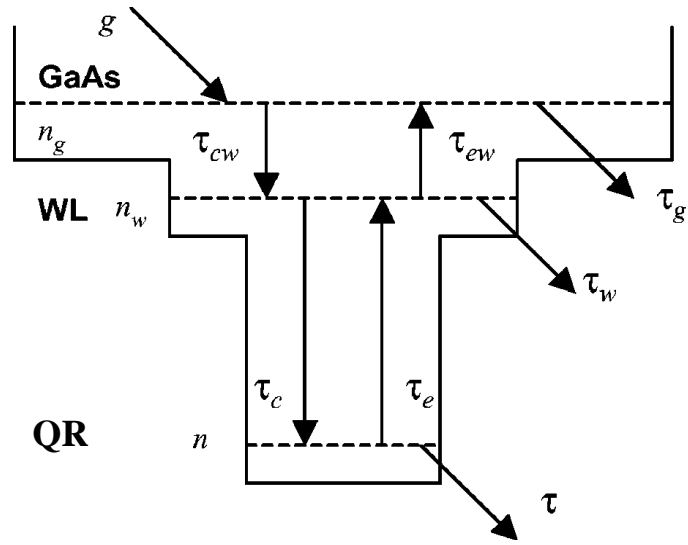


圖 2.9 量子環內載子捕捉及鬆弛過程的理論模型



2-3 參考文獻

- [2.1] Dr. Dominique Bougeard, Optical transition of 2D and 1D systems.
- [2.2] Dilna Sreenivasan , Capture, relaxation and recombination in quantum dots (2008).
- [2.3] H. Fröhlich, Proc. R. Soc. A 188, 521 (1947).
- [2.4] 孫建文，宋澤世，「砷化鎵中熱載子的弛緩程序」，物理雙月刊，二十一卷二期，277-283 頁，1994 年 4 月。
- [2.5] G. Fasol, W. Hackenberg, H. P. Hughes, K. Ploog, E. Bauser, and H. Kano, Phys. Rev. B. 41, 1461 (1990).
- [2.6] A. Fiore, M. Rossetti, B. Alloing, C. Paranthoen, and J. X. Chen L. Geelhaar and H. Riechert, Phys. Rev. B, 70, 205311 (2004).
- [2.7] Brian A. Ruzicka, Lalani K. Werake, Hassana Samassekou, and Hui Zhaoa, Appl. Phys. Lett. 97, 262119 (2010).
- [2.8] 沈志霖，「半導體量子點之光學特性」，初版，奈米科技導論，高立圖書有限公司，民國93年。
- [2.9] U. Bockelmann and G. Bastard, Phys. Rev. B. 44, 8947 (1990).
- [2.10] H. Benisty, et al. Phys. Rev. B. 44, 10945 (1991).
- [2.11] Al. L. Efros, V. A. Kharchenko, M. Rosen, Solid State Communications. 93, 281 (1995).
- [2.12] U. Bockelmann and T. Egeler, Phys. Rev. B. 46, 15574 (1992).
- [2.13] A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard, Phys. Rev. Lett. 89, 216804 (2002).
- [2.14] H. S. Ling, C. P. Lee, and M. C. Lo, J. Appl. Phys. 103, 124311 (2008).
- [2.15] E. C. Le Ru, J. Fack, and R. Murray, Phys. Rev. B. 67, 245318 (2003).

第三章 樣品介紹與實驗設備

3-1 樣品介紹

實驗的樣品是請國立交通大學電子工程系博士班林建宏學長利用分子束磊晶(Molecular Beam Epitaxy, MBE) 成長。樣品分別為未摻雜量子環 (undoped QRs)、n 摻雜量子環 (n-doped QRs) 及 p 摻雜量子環 (p-doped QRs)，而 n 及 p 摻雜量子環分別平均內建 20 個電子與電洞。

3-1-1 量子環的成長機制

利用自組裝技術成長量子環，首先利用 Stranski-Krastanow (S-K) 模式成長量子點 (量子環的前驅物)，成長過程如圖 3.1 所示，在 GaAs 基板上長只有幾個分子層的 InAs，稱之為潤濕層 (Wetting Layer, WL)，由於基板與潤濕層的晶格常數不匹配 (lattice mismatch) 達 7.2 %，導致表面的應變 (strain) 加速上升，為了降低系統的總能量，潤濕層就會從平面轉變成立體的量子點[3.1-3.3]。



圖 3.1 自組裝 InAs 量子點的成長過程

完成量子點製備後，然後成長一層很薄的 GaAs 層，如圖 3.2 所示，由於量子點的應力分布，所沉積的量子點傾向於累積在 InAs 量子點的側邊區域，而露出量子點的頂端區域。在經過適當的退火，量子點受到周邊的 GaAs 薄膜的拉力，量子點頂端的 InAs 材料開始往外遷移，形成環狀的結構，之後再覆蓋一層 GaAs，即完成量子環的製備。

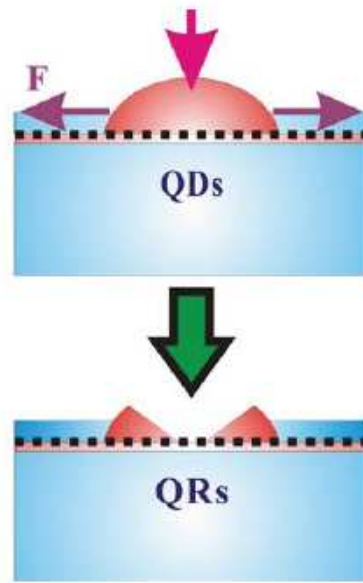


圖 3.2 自組裝 InAs 量子環的成長過程 [3.4]

3-1-2 量子環的製備流程

1. 未摻雜 InAs/GaAs 量子環的製備流程：

利用 MBE 機台為 "Varian GEN II Solid-source MBE System"，將實驗的樣品成長於 GaAs 基板(001)面上，實驗製程主要分成以下幾個步驟：

- (1) 在 600°C 的環境下，在 GaAs 基板上沉積 200nm 的 GaAs 緩衝層 (buffer layer)。
- (2) 沉積一層 30nm $\text{Al}_{0.3}\text{GaAs}$ ，此層為載子侷限層 (carrier confine layer)。
- (3) 沉積一層 150 nm GaAs，此層稱為能障層 (barrier layer)，並在成長階段的最後過程中，將溫度從 600°C 降至 520°C。
- (4) 以磊晶速率 0.056 $\mu\text{m}/\text{hr}$ 沉積 2.6 分子層 (Molecular layers, MLs) (約 0.8 nm) 的 InAs，由於 GaAs 與 InAs 晶格常數不匹配達 7.2%，為了降低系統的總能量，InAs 就自發性地從二維的平面轉變

成三維的量子點。

- (5) 將溫度回升至 600°C ，沉積一層約 2nm GaAs，此層稱為覆蓋層 (capping layer)，而量子點會受到 GaAs 薄膜的拉力，中間部份的 InAs 會往外遷移，而形成量子環結構。
- (6) 沉積一層 30nm GaAs 覆蓋在量子環上。
- (7) 重複步驟 4、5 和 6 一次，形成第二層量子環。
- (8) 重複步驟 4、5 一次，形成第三層量子環。
- (9) 沉積一層 150nm GaAs 覆蓋在量子環上。
- (10) 沉積一層 30nm $\text{Al}_{0.3}\text{GaAs}$ 。
- (11) 沉積一層 50nm GaAs。
- (12) 重複步驟 4、5 一次，在表面形成一層量子環，以作為表面形貌觀測。

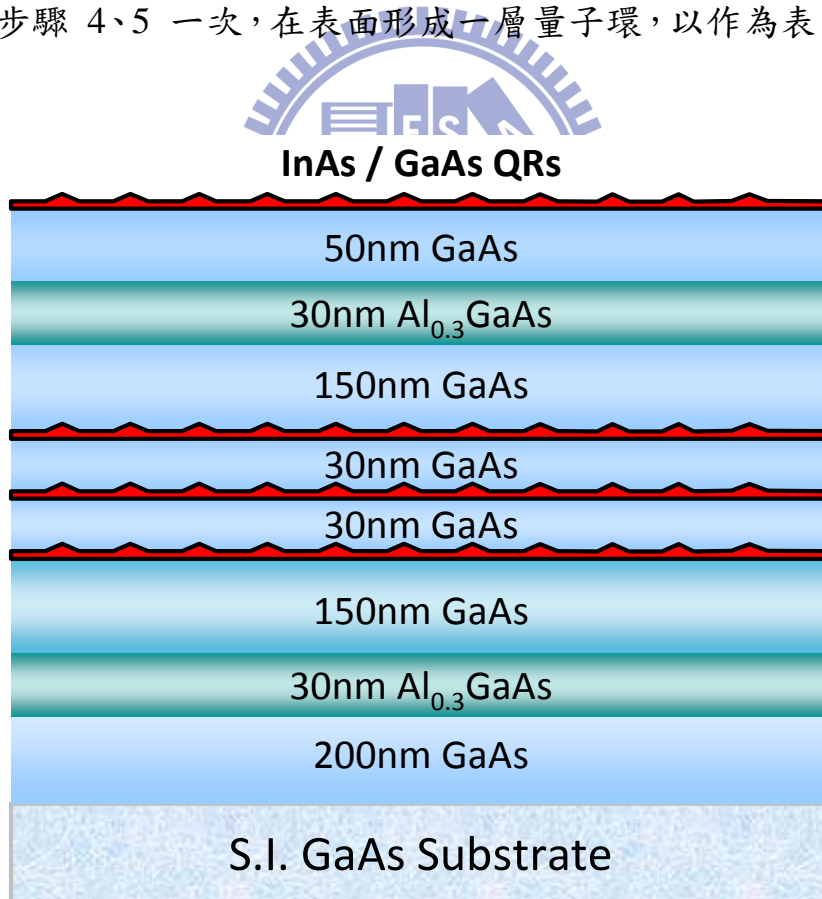


圖 3.3 自組裝未摻雜 InAs / GaAs 量子環的結構圖

2. n 及 p 調變摻雜量子環 (modulation doped QRs) 的製備流程 :

對 n 摻雜及 p 摻雜的量子環的製程，是以未摻雜量子環的製程為基本架構，分別在步驟 3、6 及 7 完成後，調變摻雜 Si 及 Be 於 GaAs，等效上摻雜 20 個電子及電洞在量子環中。

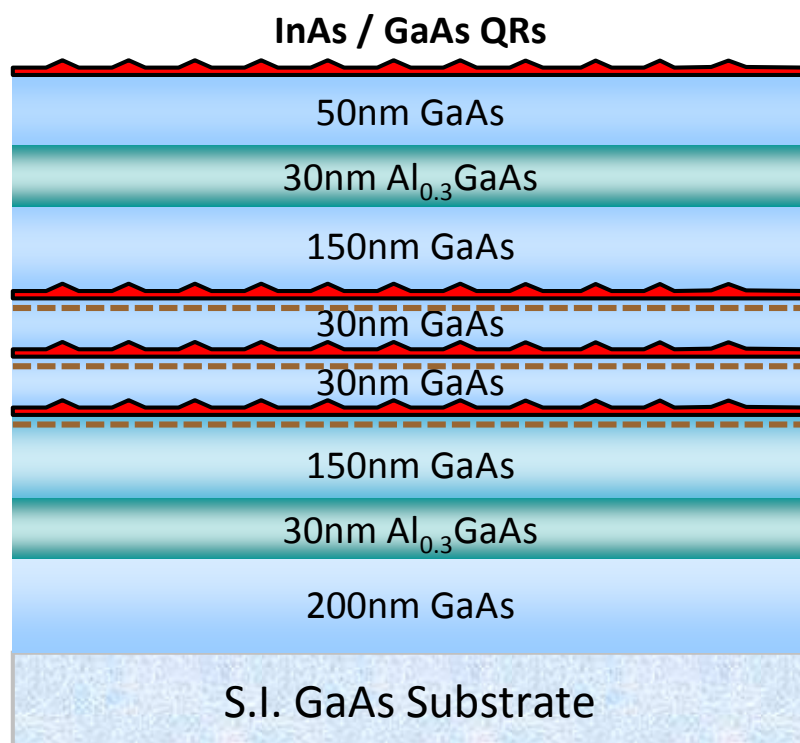


圖 3.4 p 及 n 摻雜 InAs / GaAs QRs 的結構圖

3-1-3 量子環的表面形貌

利用原子力顯微鏡 (Atomic Force Microscopy , AFM) 進行樣品表面形貌的量測。儀器是屬於 Tapping Mode，型號為 Digital-Instrument-D3100，其 X-Y 平面的解析度為 0.5 nm。

AFM 是利用附在彈性懸臂前端的一支微小的探針，當探針尖端與樣品表面接觸時，探針尖端會感受到與樣品間的凡得瓦力，並固定此力的大小，隨著樣品的起伏，懸臂上的探針會感受到不同的表面作用力而上下移動，並讀取打在懸臂上的雷射反射光的變化，經由電腦運算轉換成實際樣品的表面形貌影像。

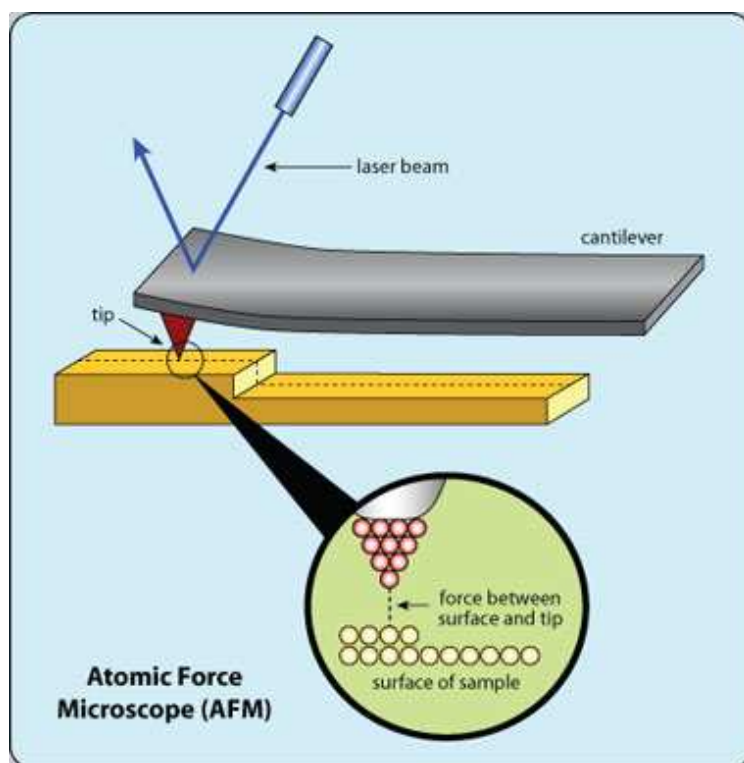


圖 3.5 AFM 的操作原理[3.5]

圖 3.6-3.8 分別為未摻雜、n 摻雜及 p 摻雜量子環的 AFM 圖，密度皆約為 $2.1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 。而內插圖標示量子環的大小，其中未摻雜量子環的底約 47 nm，高約 0.3 nm，中間凹陷深度約 0.6 nm；n 摻雜量子環的底約 50 nm，高約 0.4 nm，中間凹陷深度約 0.5 nm；p 摻雜量子環的底約 58 nm，高約 0.5 nm，中間凹陷深度約 0.7 nm。將結果歸納至表 3.1。

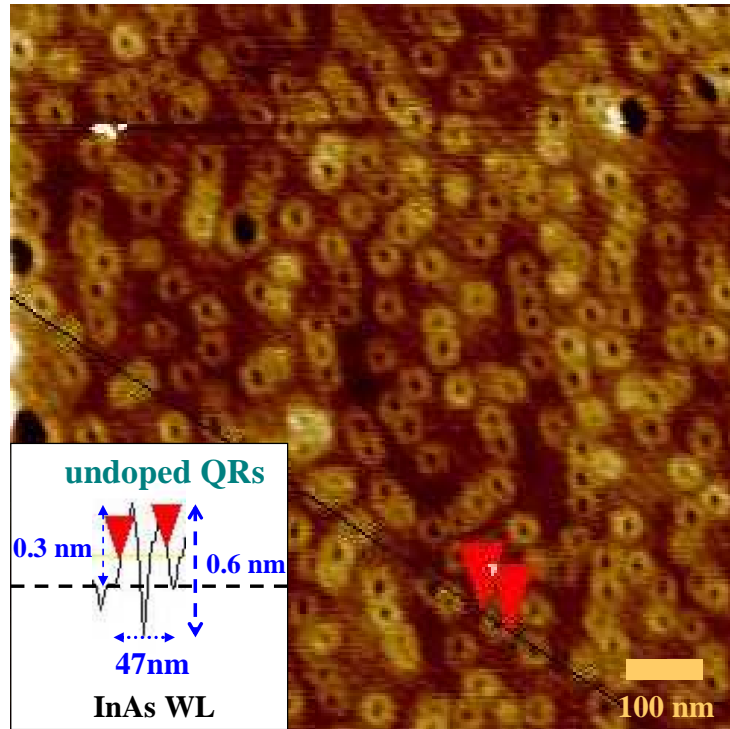


圖 3.6 未摻雜量子環的 AFM 圖

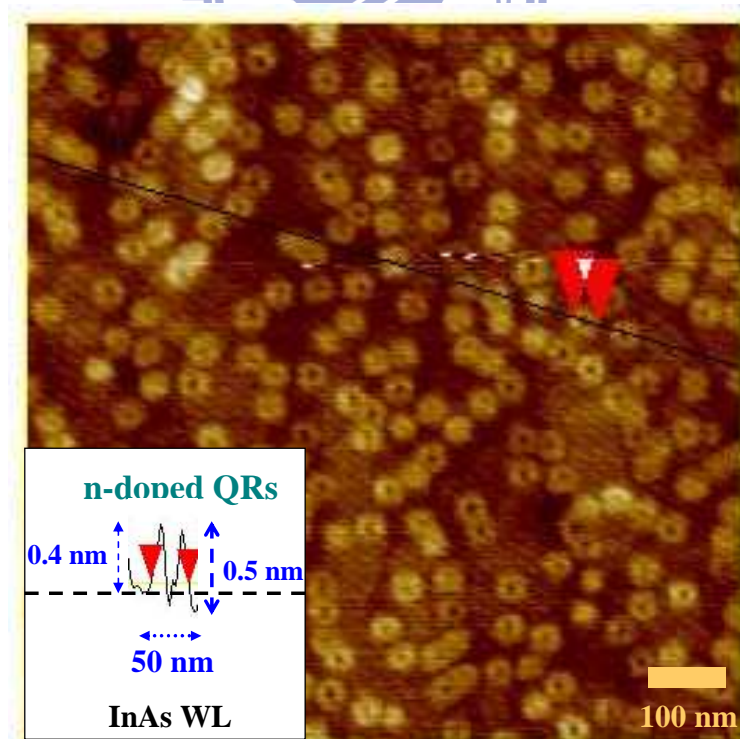


圖 3.7 n 摻雜量子環的 AFM 圖

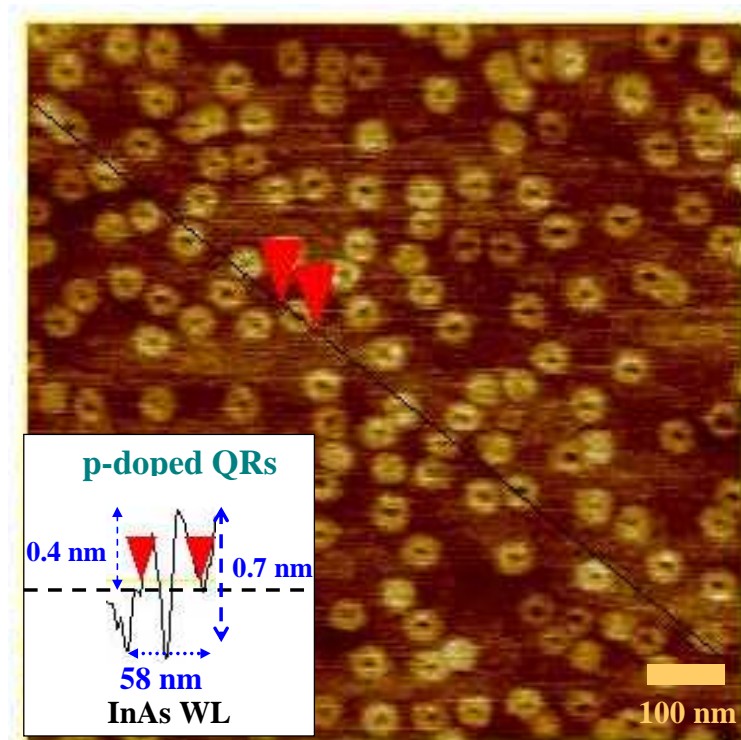


圖 3.8 p 摻雜量子環的 AFM 圖

	Diameter (nm)	Height (nm)	Depth (nm)
undoped QRs	47	0.3	0.6
n-doped QRs	50	0.4	0.5
p-doped QRs	58	0.5	0.7

表 3.1 量子環的大小

3-2 實驗設備介紹

3-2-1 共軛聚焦系統

在本系統中，使用的光源為 Ar 離子雷射，放光波長在 488 nm 的連續波 (continue wave, CW)；光偵測器為電荷耦合元件 (Charge Coupled Device, CCD) 與 InGaAs (Indium Gallium Arsenide)，響應波段分別在 200-1000 nm & 800-1600 nm；光柵解析度為 1200 / mm 及一個步進式的三軸移動平台。

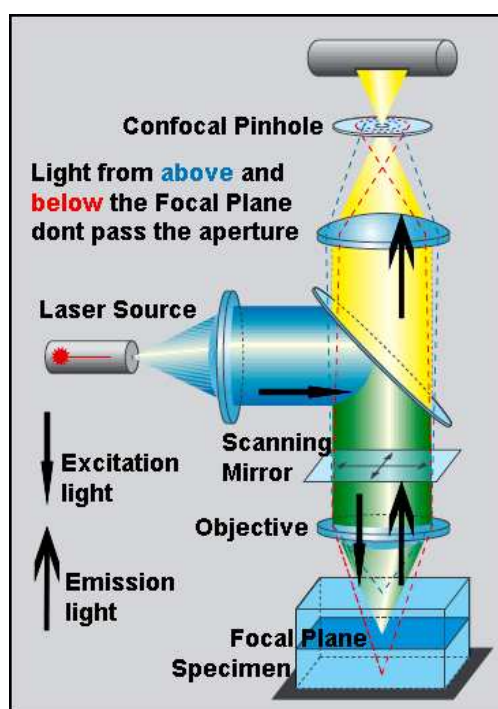


圖 3.9 共軛聚焦原理

實驗的原理如圖 3.9 所示，將顯微鏡的物鏡 (objective) 焦點與透鏡 (lens) 焦點位置互相對稱，稱之為共軛聚焦 (confocal focusing) [3.7]。當雷射激發光源經由物鏡聚焦於焦平面 (focal plane) 的樣品上，產生的螢光訊號及雷射的反射光，經由分光鏡 (beam splitter) 分光，然後聚焦並通過共焦針孔 (confocal pin hole)，由光偵測器 (photon detector) 接受訊號。

共軛聚焦不論在橫向與縱向解析度皆優於傳統的光學顯微鏡，在橫向的部份，共焦針孔可以有效地阻擋來自物鏡聚焦區域外的雜訊，因此可以精準讀取較清晰的訊號；在縱向的部份，當觀察樣品時，當其偏離焦平面時，會產生焦散的現象，若利用三軸平台漸進移動焦平面，依序讀取不同深度的影響，並經由電腦處理，重組成三度空間影像[3.6]。

3-2-2 Up-conversion 系統架設

3-2-2-1 Up-conversion 光學原理

非線性光學是近代光學的熱門分支，為物質與高強度光間的相互作用而產生的光學現象，主要效應包含光學諧波、混頻（和頻、差頻）、光束自聚焦、雙光子吸收等，而 Up-conversion 光學系統則是利用非線性光學的和頻原理，將兩道不同頻率的入射光，聚焦在非線性晶體上並且重合，而非線性晶體受到強光電場的作用，產生光學和頻（Sum frequency generation, SFG）。以下利用電磁學來描述非線性光學效應。

如圖3.10所示，當光電場 E 在一非線性介質中行進，此時介質會感應極化，可由 Maxwell 方程式推導出[3.8]

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}, \quad (3.1)$$

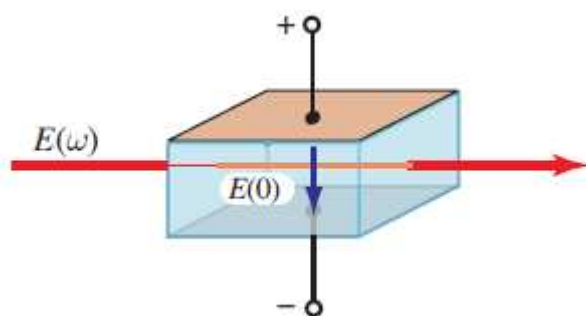


圖 3.10 光電場通過介質之感應極化過程

而極化向量 (polarization vector, P) 可以表示為線性項 P^L 與非線性項 P^{NL} 之和

$$P = P^L + P^{NL}, \quad (3.2)$$

其中

$$P^L = P^{(1)}(t) = \chi^{(1)} E^1, \quad (3.3)$$

$$P^{NL} = P^{(2)}(t) + P^{(3)}(t) + \dots = \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots, \quad (3.4)$$

$\chi^{(n)}$ 是第 n 階非線性磁化係數 (susceptibility), ($n = 1, 2, 3, \dots$)

而 Up-conversion 系統中, 光學和頻訊號是屬於二階項極化向量, 因此將重點放在二階項

$$P_2(t) = \chi^{(2)} E^2, \quad (3.5)$$

考慮兩道頻率不同的電磁波 (螢光 : ω_1 、閘道脈衝 : ω_2), 同向入射且重疊在非線性晶體中, 此時電場響應為

$$E(t) = E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c., \quad (3.6)$$

其中 c.c. 是共軛複數 (complex conjugate)

由式3.5與式3.5, 得

$$\begin{aligned} P^{(2)}(t) &= \chi^{(2)} \left(E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c. \right)^2 \\ &= \chi^{(2)} \left(E_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + E_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + 2E_1 E_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + 2E_1 E_2^* e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + c.c. \right), \\ &\quad + 2\chi^{(2)} \left(E_1 E_1^* + E_2 E_2^* \right) \end{aligned} \quad (3.7)$$

將方程式展開項分類, 每一項都對應不同的非線性晶體的輸出頻率 ω_3 。

$$(i) \text{ Second harmonic generation (SHG) : } P(2\omega_1) = \chi^{(2)} E_1^2, \quad (3.8)$$

$$(ii) \text{ Second harmonic generation (SHG) : } P(2\omega_2) = \chi^{(2)} E_2^2, \quad (3.9)$$

$$(iii) \text{ Sum frequency generation (SFG) : } P(\omega_1 + \omega_2) = 2\chi^{(2)} 2E_1 E_2, \quad (3.10)$$

$$(iv) \text{ Difference frequency generation (DFG) : } P(\omega_1 - \omega_2) = 2\chi^{(2)} 2E_1 E_2^*, \quad (3.11)$$

$$(v) \text{ Optical Rectification (OR) : } P(0) = 2\chi^{(2)} (E_1 E_1^* + E_2 E_2^*), \quad (3.12)$$

而在負值的非零頻率響應為

$$(vi) P(-2\omega_1) = \chi^{(2)} E_1^{*2}, \quad (3.13)$$

$$(vii) P(-2\omega_2) = \chi^{(2)} E_2^{*2}, \quad (3.14)$$

$$(viii) P(-\omega_1 - \omega_2) = 2\chi^{(2)} 2E_1^* E_2^*, \quad (3.15)$$

$$(ix) P(\omega_2 - \omega_1) = 2\chi^{(2)} 2E_1 E_2^*, \quad (3.16)$$

式 3.13-3.16 為式 3.8-3.12 的複數共軛型式，並不在我們的討論範圍。

如圖3.11所示，兩道頻率不同的電磁波 (ω_1 、 ω_2 且 $\omega_1 > \omega_2$)，同向入射且重疊在非線性晶體中，經由二階極化項可以產生兩種不同頻率的光， $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ (SFG) 和 $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ (DFG)。除此之外，每一道獨立的入射光 (ω_1 、 ω_2)，也會個別產生第一諧波 (first harmonic overtones) : $2\omega_1$ 和 $2\omega_2$ ，如圖所示，這個過程稱之 SHG，是 SFG 當 $\omega_1 = \omega_2$ 時的特例[3.9]。

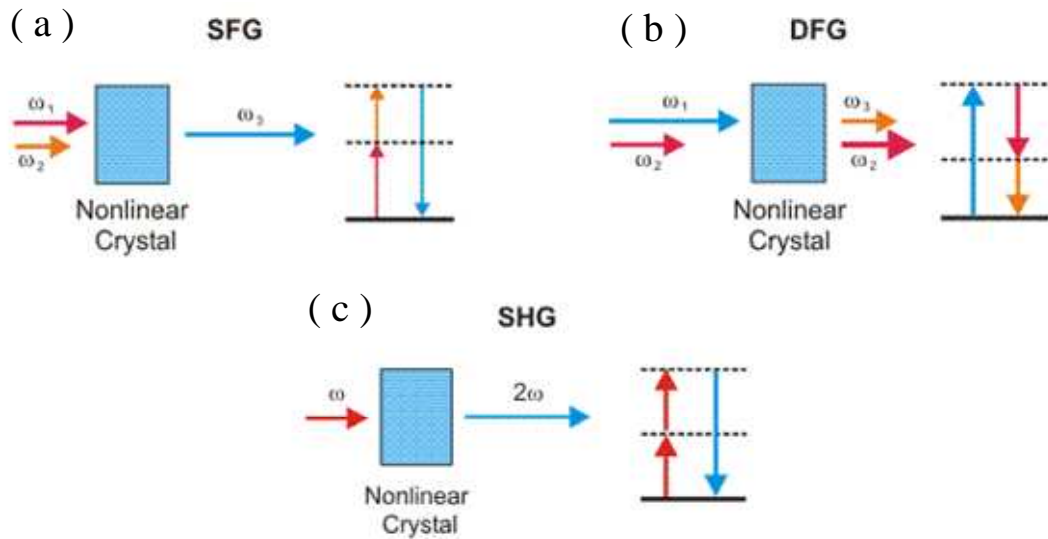


圖 3.11 二階非線性輸出訊號 (a) SFG (b) DFG (c) SHG

為了使SFG達到最高的轉換效率，入射光與輸出光必須要達到相位匹配 (phase matching)，如式

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 = 0, \quad (3.17)$$

$$\Rightarrow \frac{n_1}{\lambda_1} + \frac{n_2}{\lambda_2} = \frac{n_3}{\lambda_3} \quad \text{or} \quad n_1\omega_1 + n_2\omega_2 = n_3\omega_3, \quad (3.18)$$

對於等向性晶體(isotropic crystal)來說，不同波長的光 (λ_1 、 λ_2 、 λ_3) 其折射率也不同，故不能達到相位匹配 ($n_1\omega_1 + n_2\omega_2 \neq n_3\omega_3$)。因此必須使用單光軸晶體 (anisotropic crystal)，其對稱軸 (Z軸) 稱之為光學軸 (optic axis, OA)，晶體在各方向的折射率不同，由 Maxwell 方程式推得，

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1, \quad n_x = n_y \neq n_z, \quad (3.19)$$

如圖3.12所示，當一光電場進入晶體內時，會產生兩道互相正交的偏振光，其中一道為尋常波 (ordinary wave)，電場的偏振方向垂直於光軸，其所感受的折射率為 n_0 且 $n_0 = n_x = n_y$ ，另一道為非尋常波 (extraordinary wave)，電場偏振方向與光軸平行，其所感受的折射率為 n_e 且 $n_e = n_z$ [3.10]，令 $\Delta n = n_e - n_0$ ，當 $\Delta n > 0$ 時，稱之為正單光軸晶體，如圖 3.13 (a) 所示；當 $\Delta n < 0$ 時，則為負單光軸晶體，如圖 3.13 (b) 所示 [3.11]。

如圖3.14，當光入射角與晶體光軸夾 θ 角，兩個相互正交的傳播座標軸分別為 $n_e^*(\theta=0) = n_0$ 與 $n_e^*(\theta=\pi/2) = n_e$ ，則光電場感受的折射率 n_e^* 與 θ 的關係式為 [3.12]

$$n_e^*(\theta) = \frac{n_0 n_e}{\sqrt{n_0^2 \sin^2 \theta + n_e^2 \cos^2 \theta}}, \quad (3.20)$$

因此可以藉由改變入射的角度 θ ，來調控 $n_e^*(\theta)$ ，以滿足相位匹配的條件 ($\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 = 0$)，來達到最高的 SFG 轉換效率。而相位匹配主要有兩種型式，如圖3.15所示，當兩個入射電磁波其偏振方向相互平行時，稱為型式 I，而輸出 SFG 訊號其偏振方向會與入射電磁波平行；當兩個入射電磁波其偏振方向相互垂直時，稱為型式 II，而輸出 SFG 訊號的偏振方向則會與頻率較小的電磁波同向 [3.13]。

將正(負)單光軸在不同型式的相位匹配的條件整理至表3.2，可以根據實驗的需求，採用適合的晶體，並計算出相位匹配角，以產生高轉換效率的 SFG 輸出訊號。

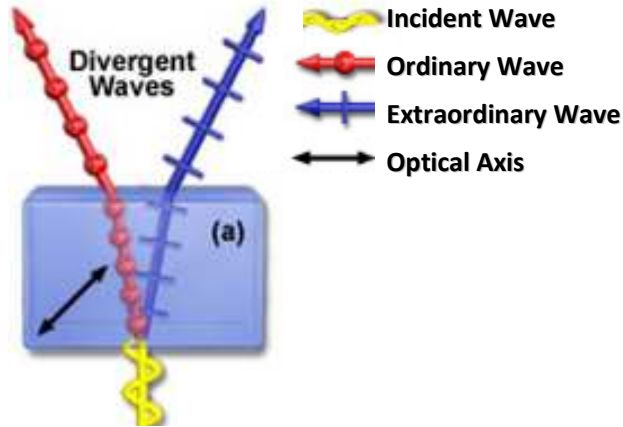
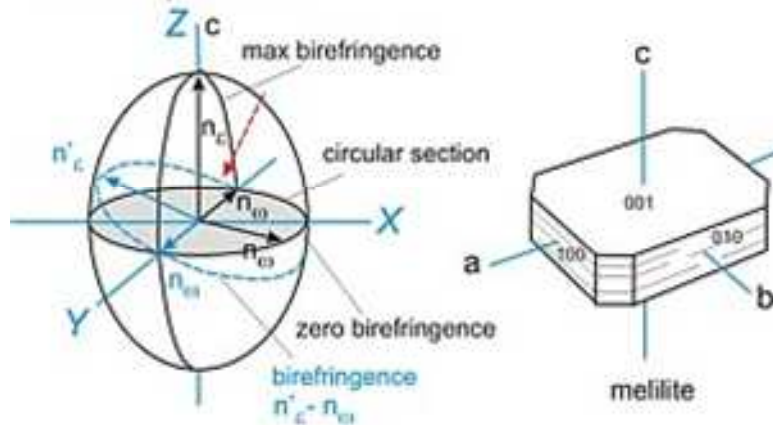


圖 3.12 光電場進入晶體產生兩道偏振光

(a) uniaxial positive



(b) uniaxial negative

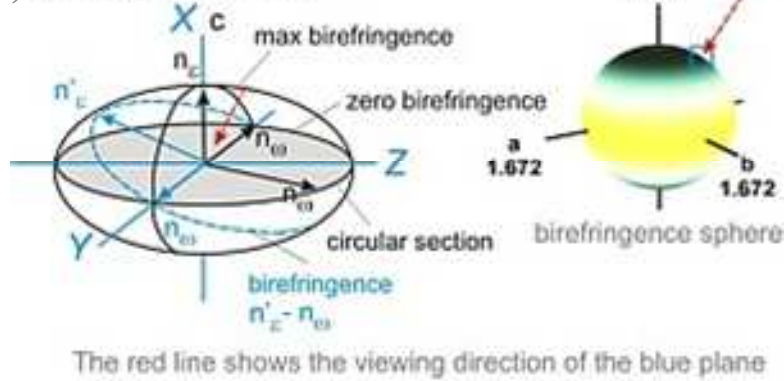


圖 3.13 非線性晶體 (a) 正單光軸 (b) 負單光軸

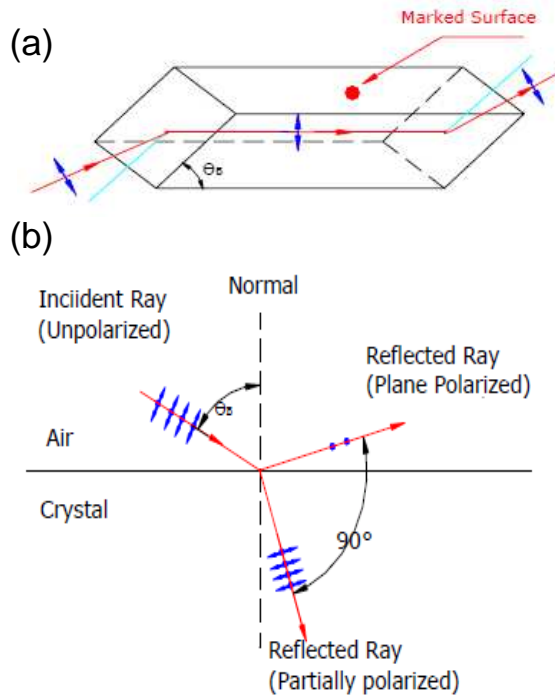


圖 3.14 入射光以 θ 角進入非線性晶體 (a) 立體圖 (b) 平面圖

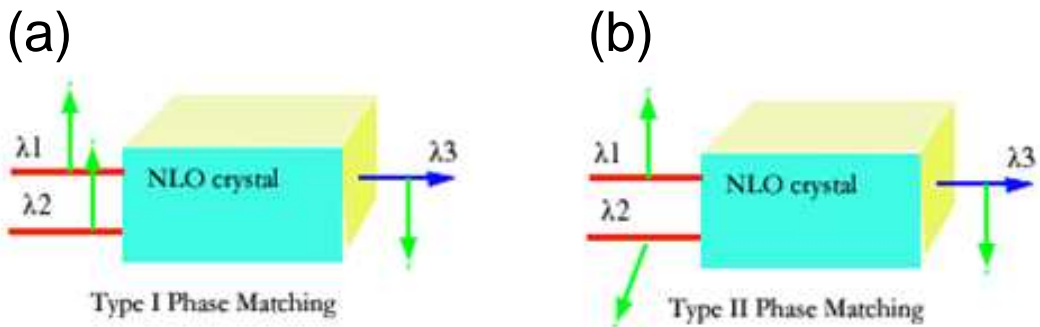


圖 3.15 相位匹配型式 (a) Type I (b) Type II

Type \ NLO	Uniaxial Positive ($\Delta n = n_e - n_o > 0$)	Uniaxial Negative ($\Delta n = n_e - n_o < 0$)
	I	$n_3^o \omega_3 = n_1^e \omega_1 + n_2^e \omega_2$
II	$n_3^o \omega_3 = n_1^e \omega_1 + n_2^o \omega_2$	$n_3^e \omega_3 = n_1^o \omega_1 + n_2^e \omega_2$

表 3.2 不同的相位匹配條件

3-2-2-2 Up-conversion 光學系統架設

如圖3.16所示，為 FOG 100 超快雷射時間解析光學系統，主要分為 Up-conversion 內部光學組件、CDP2022 單光儀(monochromater)及光電倍增管(photon multiplier tube, PMT)，Ti:Sapphire 雷射脈衝光源：屬於水平偏振光，波長調控至 780 nm，脈衝解析度約為 200 fs，重複頻率 (repetition rate) 為 76 MHz，平均功率約為 800 mW [3.4]。

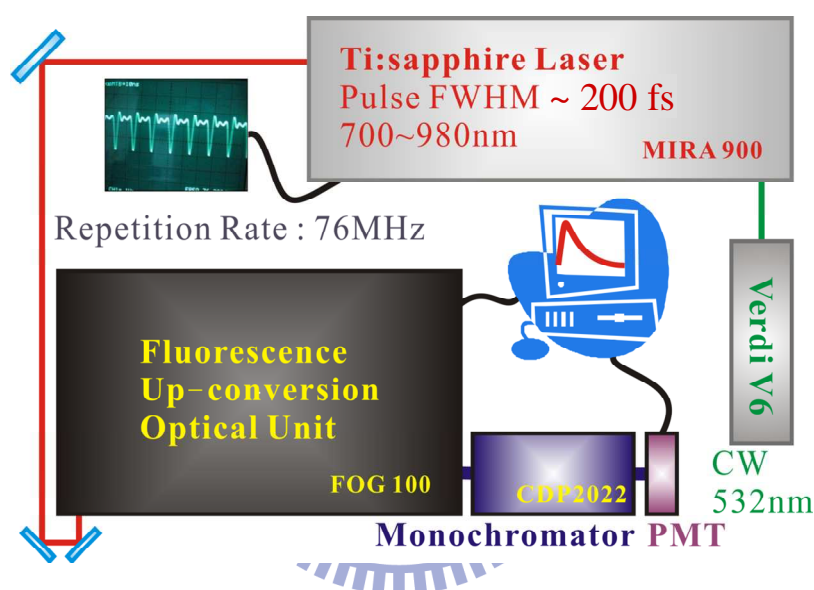


圖 3.16 Up-conversion 系統的架設圖

首先介紹實驗的光路架設，如圖3.17 所示[3.4]，首先將超快脈衝雷射導入系統內，此系統有兩個入口 IN1 及 IN2，我們選擇光程較長的入口 (IN1)，以便校正光路。在校正完前置光路 (pre-mirror) 後，接著雷射經由分光鏡 (beam splitter, BS)，分成激發脈衝 (pump pulse) 與閘道脈衝 (gate pulse) 兩道雷射光，第一道激發脈衝先後經過偏光鏡 (break) 及聚焦鏡(L1) 後激發樣品產生PL，然後經由收光鏡 AC 收光；而第二道閘道脈衝會經過 M2、M3 然後到達光延遲線 (optical delay line)，光延遲線可以調控閘道脈衝到達非線性晶體 (NC2) 的時間，最小的單位為 6.25 fs。此

時激發脈衝所產生的PL (頻率 : ω_{PL} , 電場方向 : E_{PL}) 與閘道脈衝 (頻率 : ω_G , 電場方向 : E_G) 會一起進入聚焦鏡 (L2), 聚焦且重疊在非線性晶體 (Type II BBO 負型單軸晶體), 如圖3.18 (a) 所示, 鎖定要量測的PL波長, 由表3.2 的公式 ($n_3^e \omega_3 = n_1^o \omega_1 + n_2^e \omega_2$), 計算相位匹配角度 θ , 並轉動 BBO 至此角度, 即可產生和頻光。如圖3.18 (b) 所示, 控制光學延遲線 (Optical delay line) 並設定要量測的時間範圍, 即可掃描出完整的时间解析光譜 [3.14]。

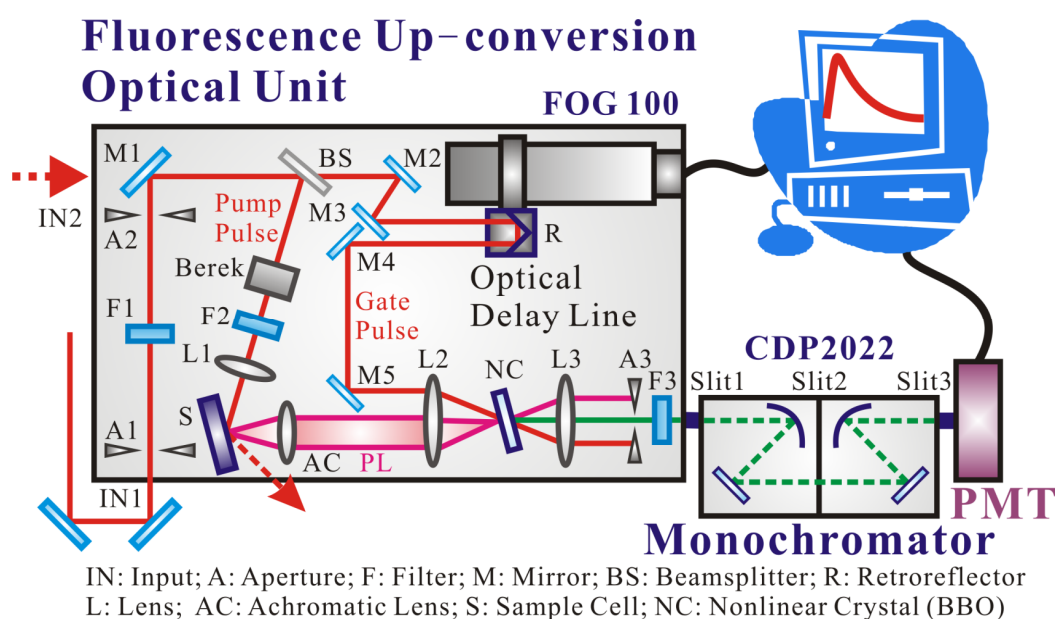


圖 3.17 Up-conversion 內部光學系統的架設圖

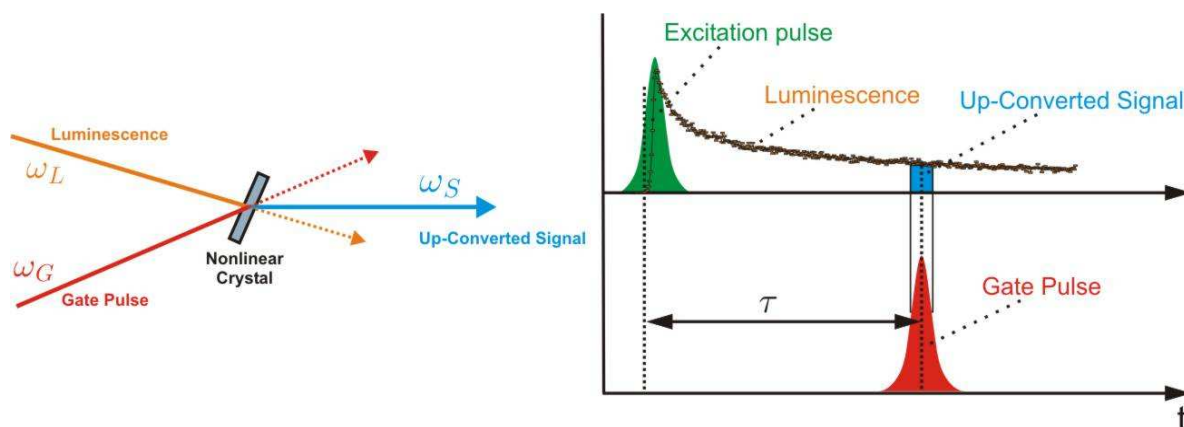


圖 3.18 (a) SFG 訊號的輸出 (b) 時間解析光譜

3-3 參考文獻

- [3.1] D. Leonard, K. Pond, and P. M. Petroff, Phys. Rev. B. 50, 11687 (1994).
- [3.2] J. M. Moison, et al. Appl. Phys. Lett. 64, 196 (1994).
- [3.3] L. Chu, M. Arzberger, G. Bohm and G. Abstreiter, J. Appl. Phys. 85, 2355 (1999).
- [3.4] 林建宏，「砷化銻/砷化鎵量子點與量子環的載子動力學」，碩士論文，2008 年。
- [3.5] The Nanoscale Informal Science Education Network
- [3.6] 王義閔、魏良安、高甫仁，「共焦顯微鏡雜記」，第二十三卷二期，物理雙月刊，2001 年。
- [3.7] Rudbeck Laboratoriet at Uppsala universitet.
- [3.8] Nicolaas Bloembergen, “Nonlinear-Opticsat”.
- [3.9] Zacharias , Generation of tunable ps laser pulses in the mid infrared.
- [3.10] Microscopy Resource Center, “Birefringence Variations with Crystal Orientation” .
- [3.11] Imperial College Rock Library ,”Imperial College Rock Library Learn Tutorial - Measuring Optic Sign: Uniaxial Minerals Definition”.
- [3.12] Nonlinear Optical Crystals. AOTK, Inc.
- [3.13] “Phase-matching”, Crystech (2006).
- [3.14] Ultrafast-Dynamics Lab at Vienna University.

第四章 實驗結果與討論

4-1 變激發通量之穩態螢光光譜分析

在量測時間解析光譜實驗之前，必須先知道樣品的螢光放光位置，才能進行時間解析量測。

穩態變激發強度 PL 實驗是利用共焦顯微光激螢光系統 (Confocal System)，以 Ar 離子雷射當激發光源，波長為 488nm，並利用 ND filter 改變雷射激發密度。

圖 4.1、圖 4.2 與圖 4.3 分別是未摻雜、n 摻雜及 p 摻雜量子環在激發密度為 3000 W/cm²，在溫度為 300K 的條件下所量測的穩態螢光光譜。並利用 Gaussian 函數擬合(式 4.1)，得知各量子環的能障 (barrier)、潤濕層 (wetting layer, WL)、激發態 (excited state, ES)和基態 (ground state, GS)的放光位置，整理至表 4.1。

$$I = I_0 + \sum_{k=1}^n \left(\frac{A}{w \times \sqrt{\pi/2}} \right) \cdot \exp \left[-2 \times \left(\frac{\lambda - \lambda_c}{w} \right)^2 \right], \quad (4.1)$$

其中 I 是 PL 強度，I₀ 是雜訊強度，A 是擬合常數，n 是波峰數，w 是半高寬 (Full width at half maximum, FWHM)，λ_c 是波峰位置。

由表 4.2，可以發現 p 及 n 摻雜量子環相較於未摻雜量子環，基態的峰值分別產生 5meV 的藍移 (blue-shift)及紅移 (red-shift)。對 p 摻雜的量子環來說，會加速交互擴散 (interdiffusion)，使得量子環的能隙變大，而產生藍移的現象；對 n 摻雜量子環來說，可以抑制交互擴散，使得能隙變大幅度相較於未摻雜的量子環小，而產生紅移的現象[4.1-4.3]。

圖 4.4- 4.6 分別是未摻雜、n 摻雜及 p 摻雜量子環在變激發密度 300 W/cm² 所量測的穩態螢光光譜。當激發強度增加時，由於能帶填充效應 (energy band filling effect)，電子開始往高能帶填充，使得基態的峰值有些微的藍移。

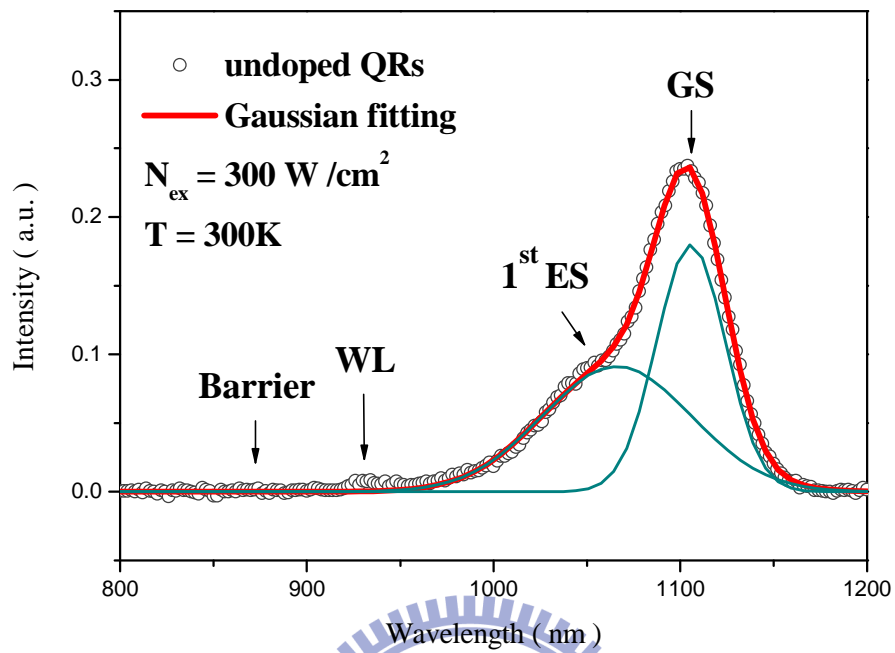


圖 4.1 室溫下，未摻雜量子環的穩態螢光光譜

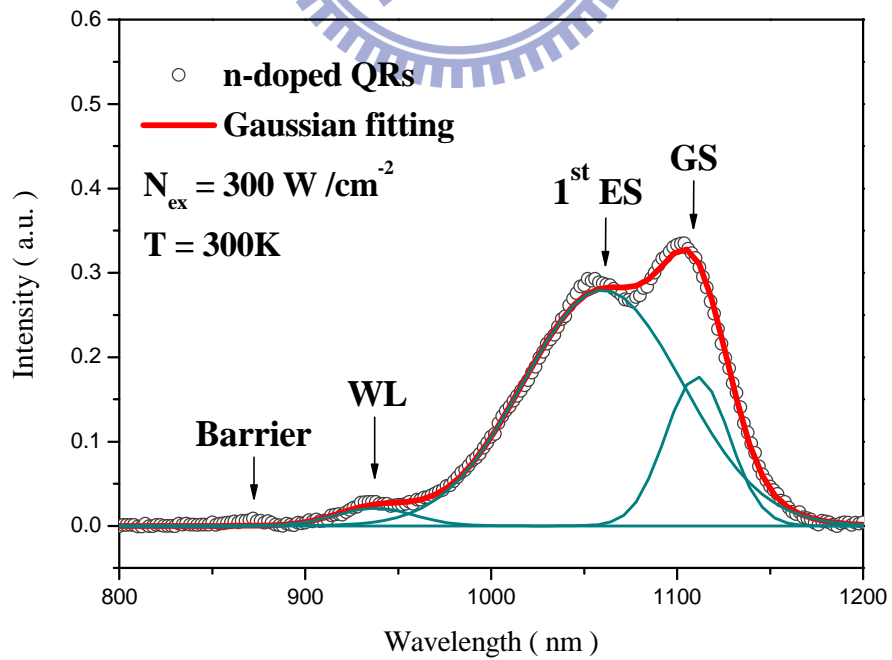


圖 4.2 室溫下，n 摻雜量子環的穩態螢光光譜

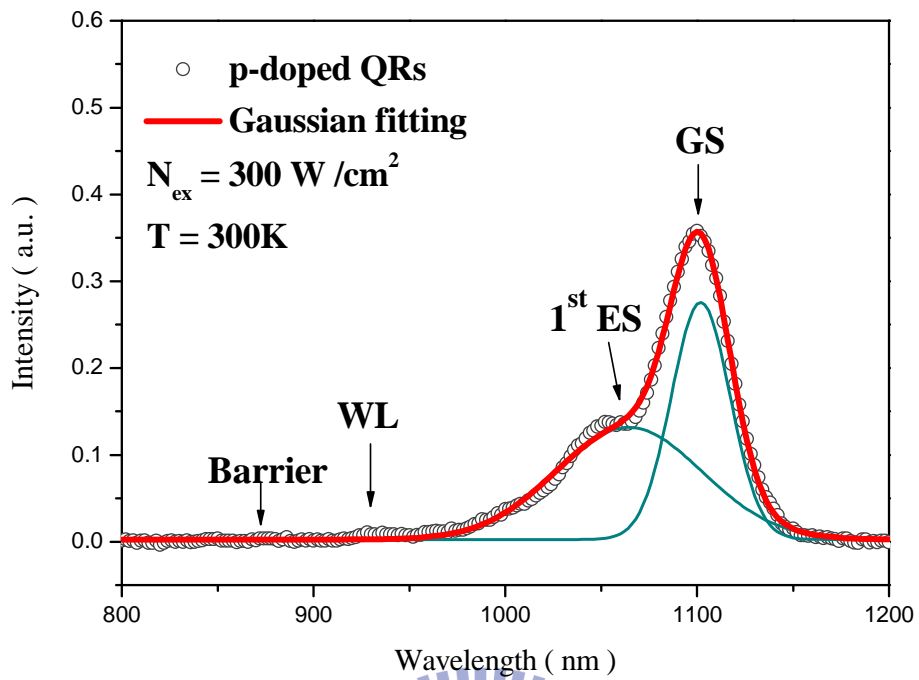


圖 4.3 室溫下，p 摻雜量子環的穩態螢光光譜

Sample \ State	Barrier	WL	1 st ES	GS
undoped QRs			1066 nm (1.163 eV)	1106 nm (1.121 eV)
n-doped QRs	873 nm (1.420 eV)	932 nm (1.330 eV)	1060 nm (1.170 eV)	1111 nm (1.116 eV)
p-doped QRs			1065 nm (1.164 eV)	1101 nm (1.126 eV)

表 4.1 室溫下，不同量子環的各能帶放光峰值位置

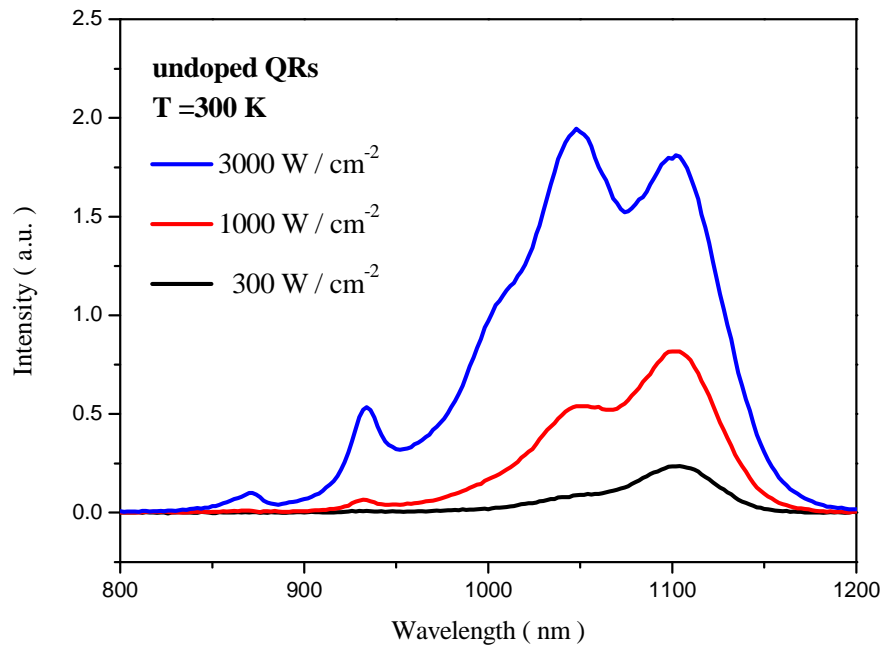


圖 4.4 未摻雜量子環的穩態螢光光譜

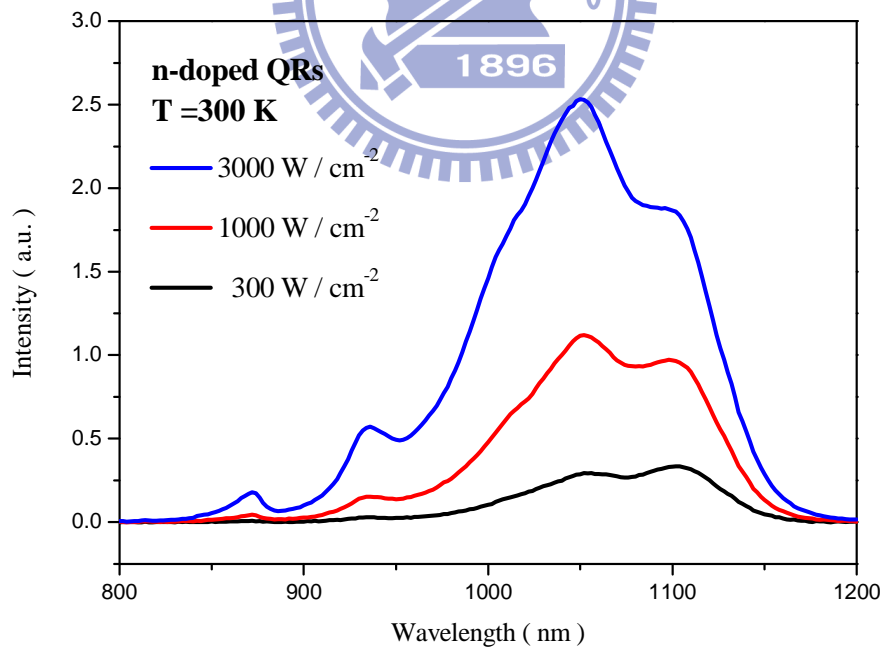


圖 4.5 n 摻雜量子環的穩態螢光光譜

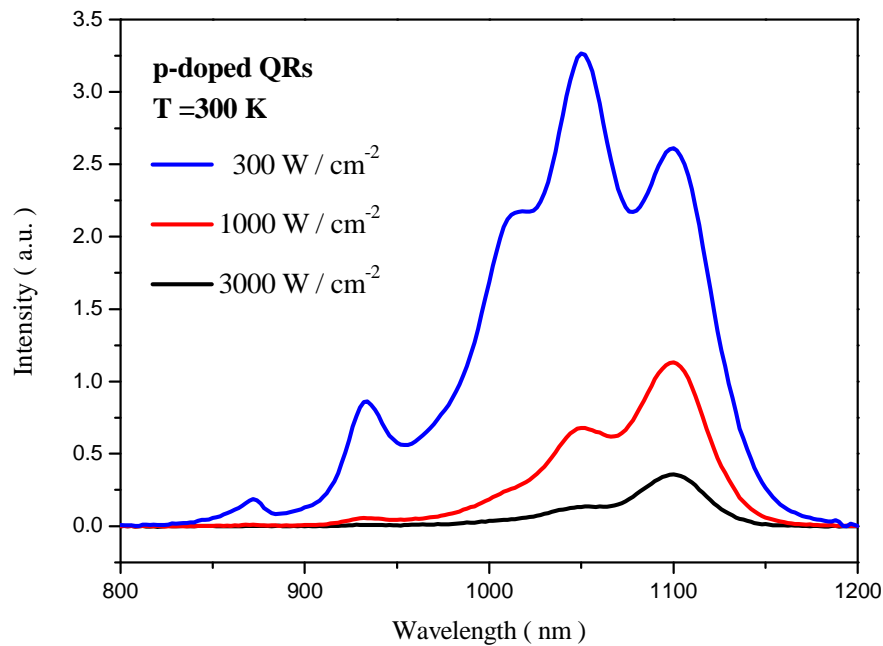


圖 4.6 p 摻雜量子環的穩態螢光光譜

4-2 Modulation-doped InAs/GaAs QRs 之載子動力學

由表4.1的結果，我們分別對能障、潤濕層、激發態、基態的峰值進行 PL 光譜時間解析。圖4.7 - 4.9分別為未摻雜、n 摻雜及 p 摻雜量子環在室溫下，不同能態的時間解析光譜，利用 Ti:sapphire Laser 當作激發光源，以能量 $\hbar\omega = 1.59\text{eV}$ ，低激發密度 $N_{\text{ex}} = 300\text{W}/\text{cm}^2$ 的線偏振光激發。

可以發現這三片量子環的能障螢光生命期都很短，皆約 30 ps 左右，比本質 GaAs 的螢光生命期（約 50 ps）還短，且 WL 的螢光生命期也很短，因此可以預期樣品中量子環結構對載子的捕捉能力很好。而未摻雜與 p 摻雜量子環在能態越低的位置，螢光的生命期越長，但 n 摻雜量子環的第一激發態與基態的螢光生命期幾乎相同，這是由於量子環中大量的內建電子隨機填充 (random filled) 在基態與激發態，因此兩者的螢光生命期幾乎相同。

圖4.10 - 4.12 分別為未摻雜、n 摻雜及 p 摻雜量子環的激發態螢光捕捉時間解析光譜，隨著激發密度加大，螢光的上升速率越快；同樣地，基態螢光捕捉時間解析光譜也呈現類似的結果，如圖4.13 - 4.15所示。

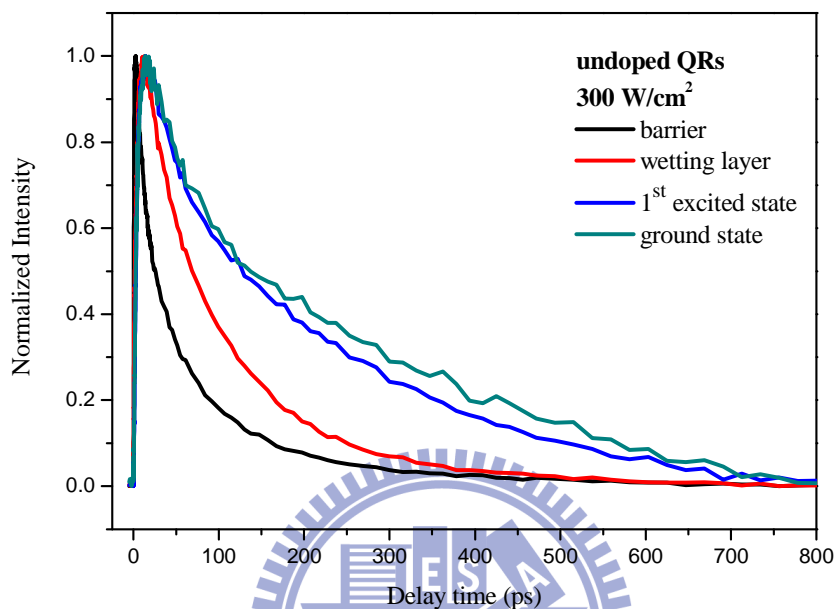


圖 4.7 未摻雜量子環在不同能帶的時間解析光譜

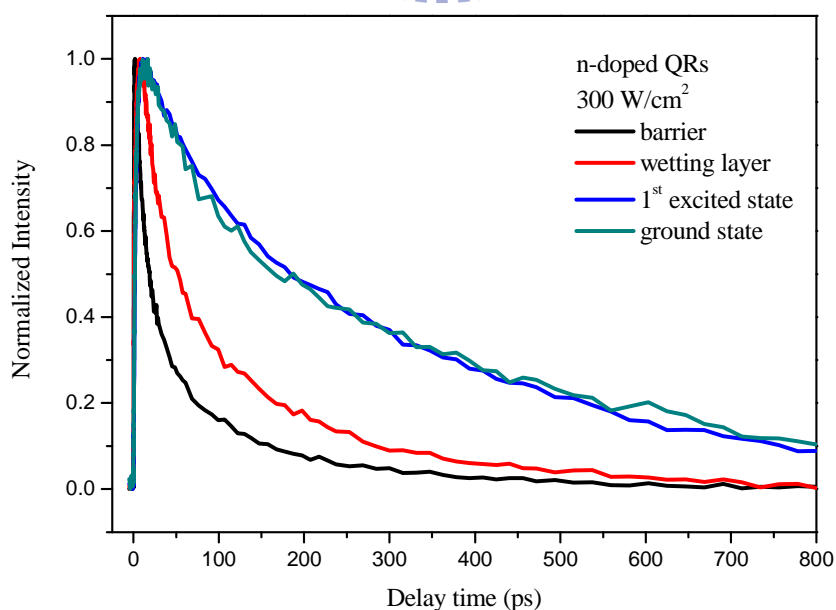


圖 4.8 n 摻雜量子環在不同能帶的時間解析光譜

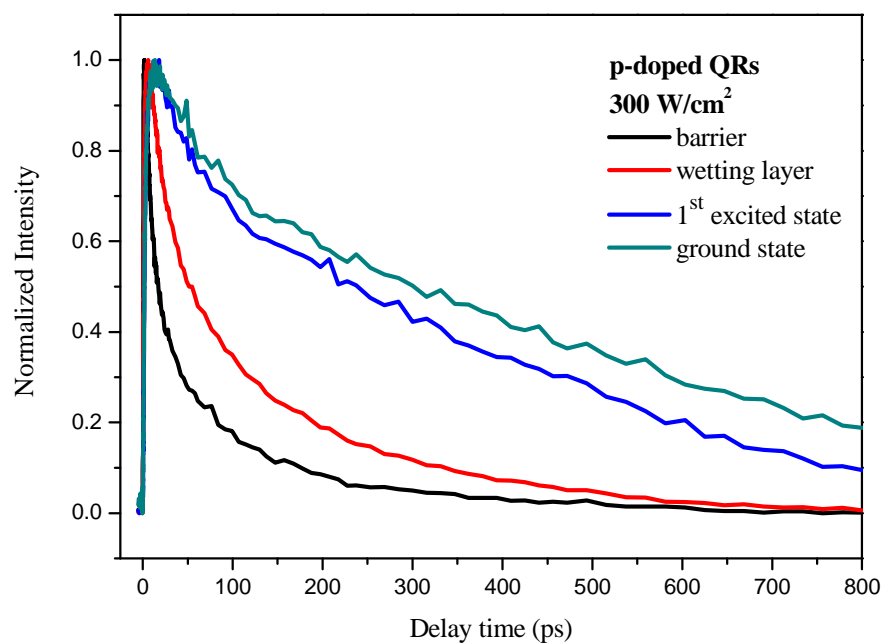


圖 4.9 p 摻雜量子環在不同能帶的時間解析光譜

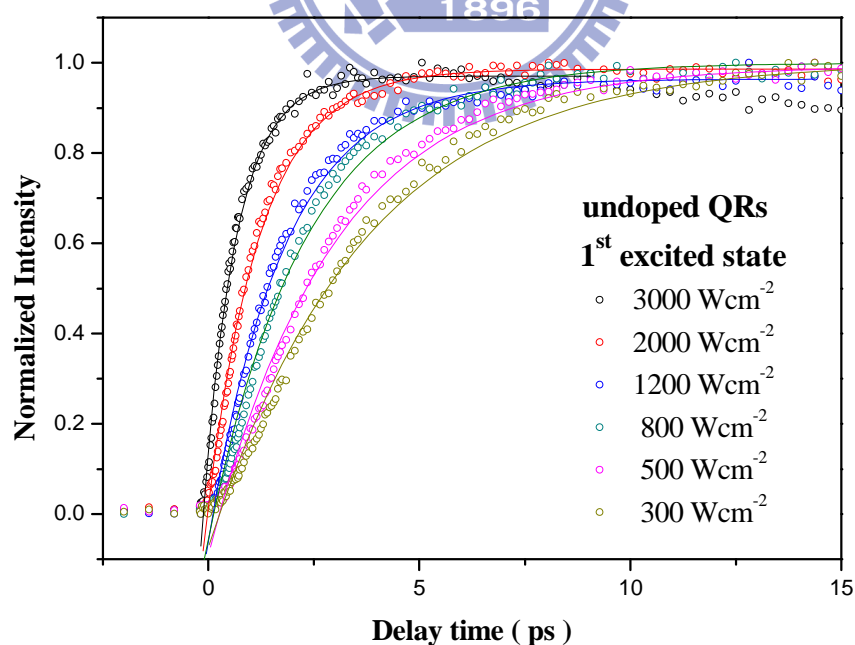


圖 4.10 未摻雜量子環的激發態螢光捕捉時間解析光譜

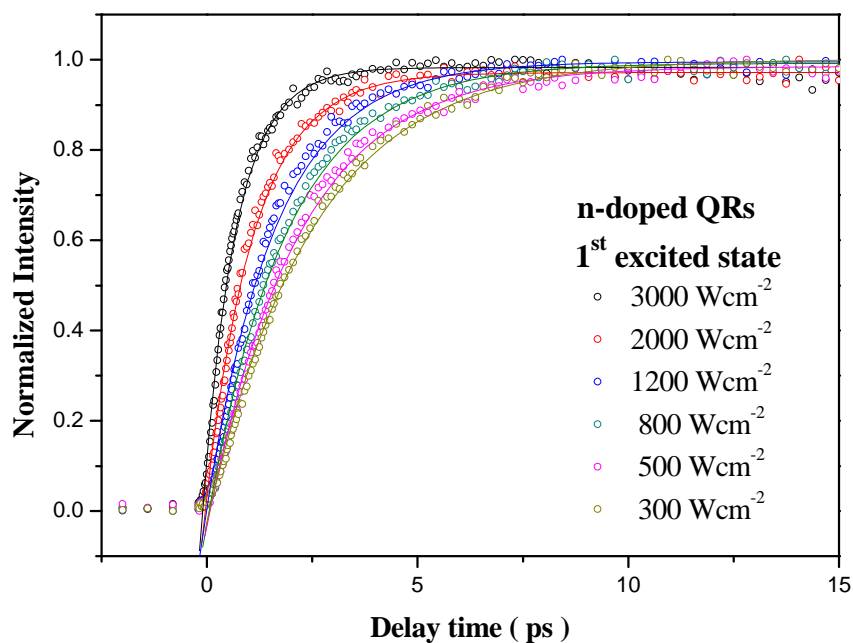


圖 4.11 n 摻雜量子環激發態的螢光捕捉時間解析光譜

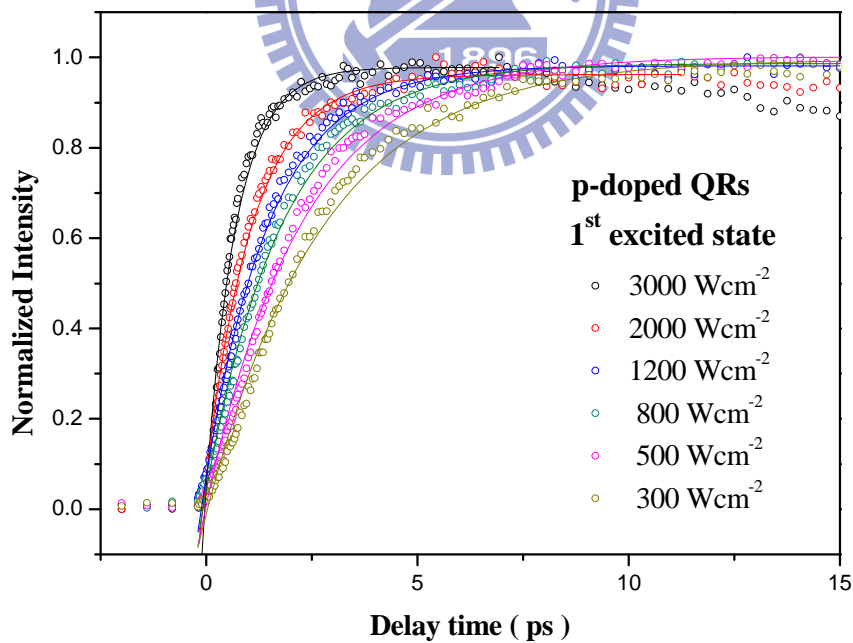


圖 4.12 p 摻雜量子環激發態的螢光捕捉的時間解析光譜

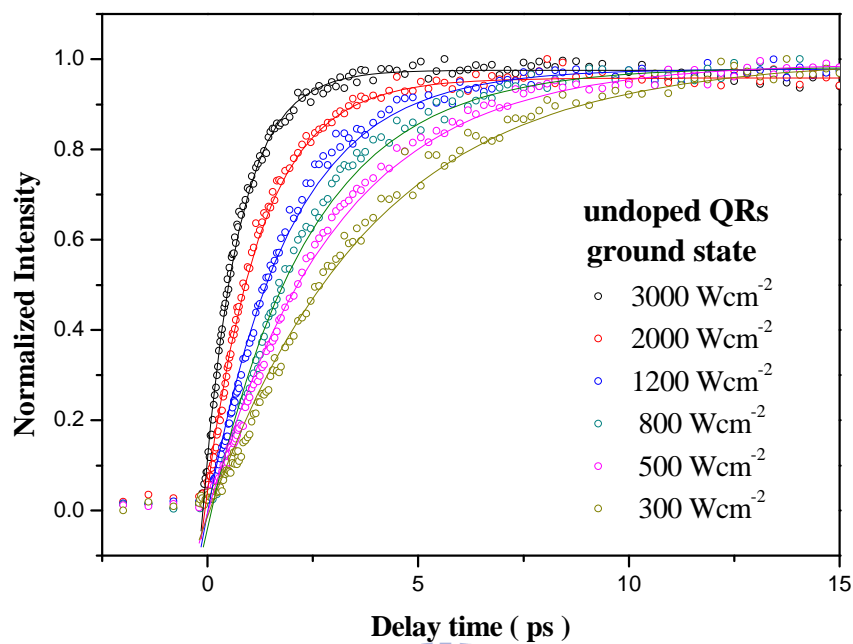


圖 4.13 未摻雜量子環基態的螢光捕捉時間解析光譜

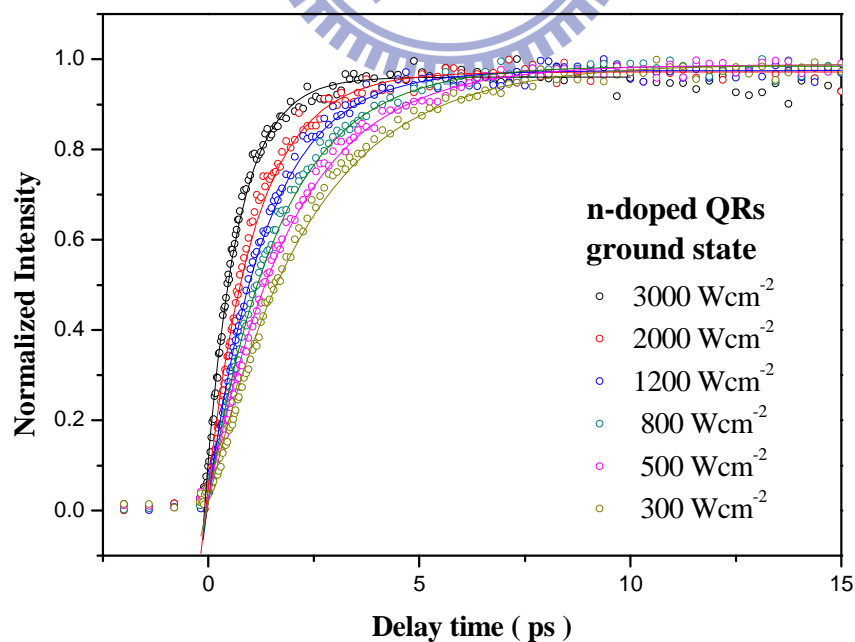


圖 4.14 n 摻雜量子環的基態螢光捕捉時間解析光譜

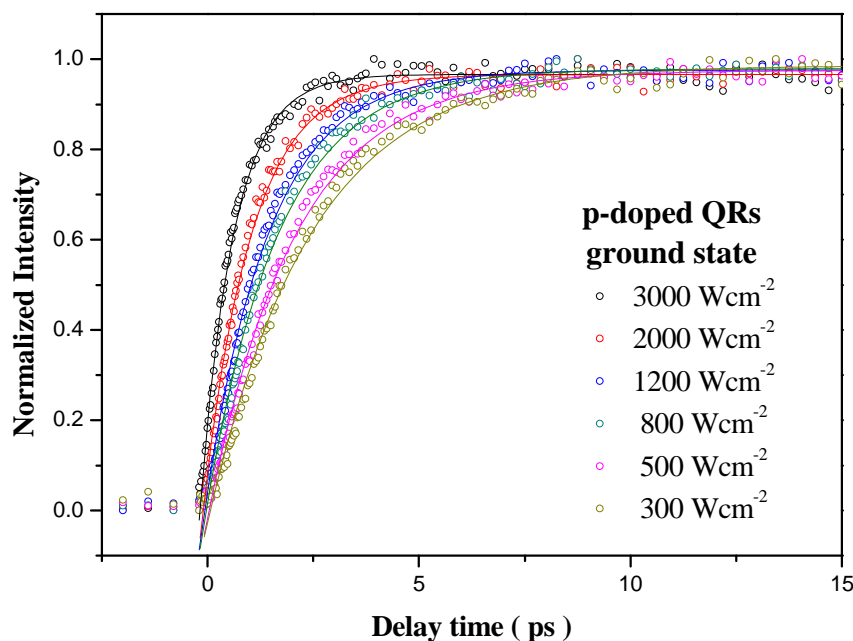


圖 4.15 p 摻雜量子環的基態螢光捕捉時間解析光譜

針對圖 4.10 至圖 4.15，利用 $I(t) = I_0 \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_r}\right) \right]$ 來擬合，其中 $I(t)$

是螢光隨時間 t 變化的強度， I_0 是螢光的飽和強度， τ_r 是螢光的上升時間。擬合的結果如圖 4.16 所示，可以看出量子環不論有無摻雜載子，當光激發密度越高，其基態或激發態的上升時間越小，即載子捕捉速率變快，這是由於高密度的激發，產生大量的熱載子，增加載子-載子散射 (carrier-carrier scatter) 的機率，載子可以將能量釋放給連續能帶的其他載子，易鬆弛至較低的能階，使得載子被量子環捕捉速度加快。當在低光激發密度時，摻雜電子或電洞的量子環其螢光上升時間比未摻雜的量子環短，這是由於摻雜量子環內建的冷載子，加速載子-載子散射及載子捕捉至量子環的激態與基態，因此載子鬆弛速率相較於未摻雜量子環快。

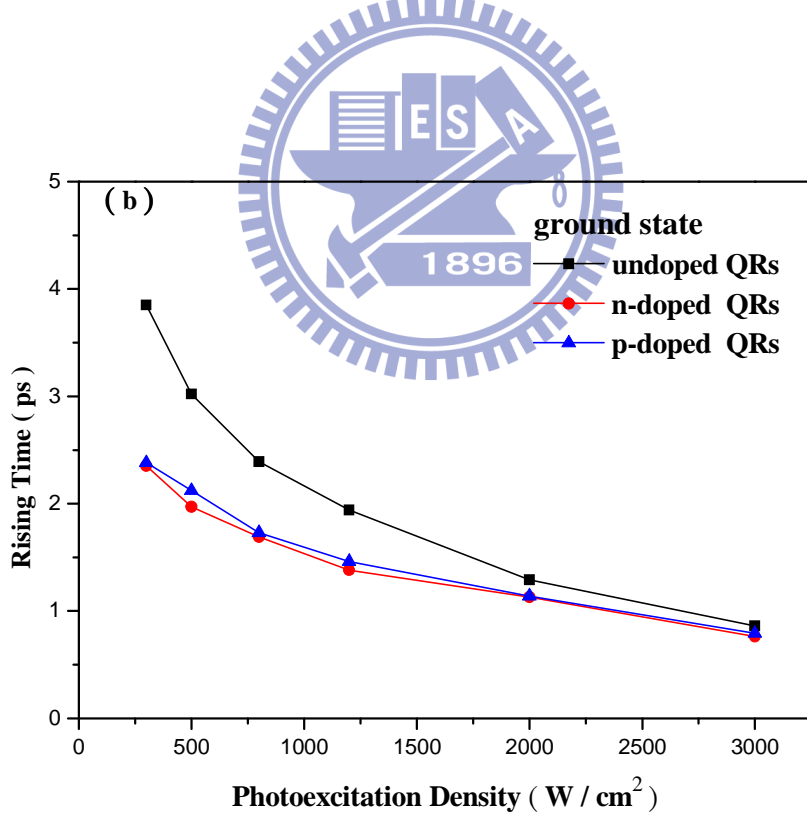
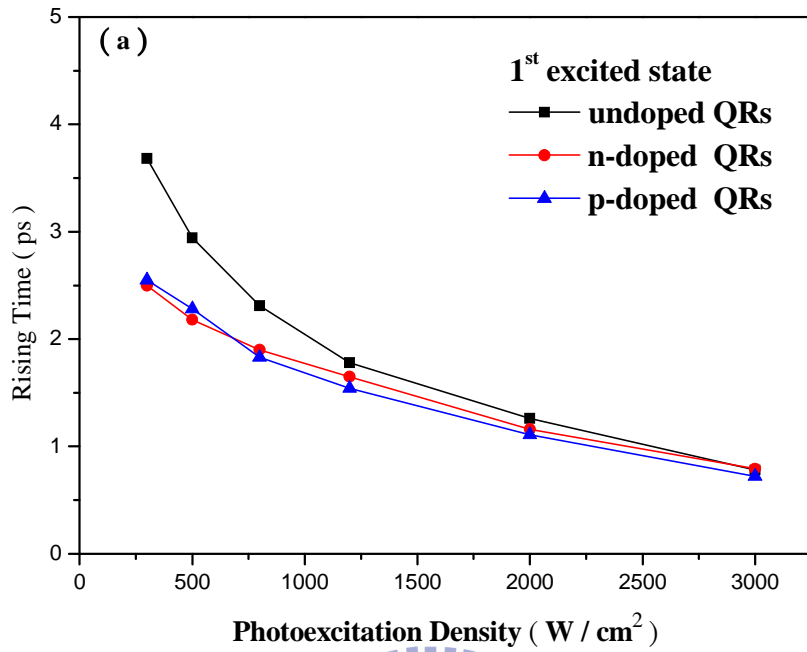


圖 4.16 量子環螢光上升時間 (a) 激態 (b) 基態

4-3 參考文獻

[4.1] D. G. Deppe, N. Holonyak, Jr., W. E. Plano, V. M. Robbins, J. M.

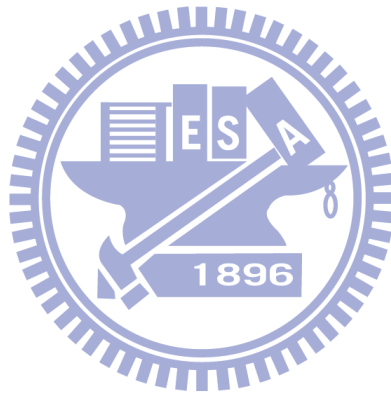
Dallesasse, K. C. Hsieh, and J. E. Baker, *J. Appl. Phys.* 64, 1838 (1988).

[4.2] D. G. Deppe and N. Holonyak, Jr., *J. Appl. Phys.* 64, R93 (1988).

[4.3] O. B. Shchekin, D. G. Deppe, and D. Lu, *Appl. Phys. Lett.* 78, 3115 (2001).

[4.4] K. Gundogdu, et al. *Appl. Phys. Lett.* 85, 4570 (2004)

[4.5] J. Siegert, *Phys. Rev. B.* 72, 085316 (2005).



第五章 結論

我們利用解析度約 200 飛秒(fs) 的超快光譜系統,探討未摻雜與摻雜的量子環的載子捕捉與鬆弛過程。不論量子環有無摻雜載子,當光激發密度越高,載子-載子散射(carrier-carrier scatter)的機率增加,載子可以將能量釋放給連續能帶的其他載子,鬆弛至較低的能階,使得載子被量子環捕捉速度加快;而在低光激發密度時,摻雜的量子點基態和激發態的載子捕捉速率較未摻雜的量子環快,這是由於摻雜電子或電洞的量子環存在內建的冷載子,加速載子-載子散射與捕捉電洞及電子進入量子環的激態及基態。而量子環載子鬆弛的過程且WL的螢光生命期也很短,未摻雜與p摻雜量子環在能態越低的位置,螢光的生命期越長,但n摻雜量子環的第一激發態與基態的螢光生命期幾乎相同,這是由於量子環中大量的內建電子填充在基態與激發態,因此兩者的螢光生命期幾乎相同。

第二部份 三五族半導體的自旋動力學

第一章 前言

1-1 緒論

電子除了具有電荷 (charge) 特性外，還具有一種非古典的量子特性——自旋 (spin)，電子可以處於自旋向上態 (spin-up state) 或自旋向下態 (spin-down state) [1.1]。傳統的電子元件是利用電子的電荷特性，隨著科技的發展，元件尺度已微縮至奈米等級，高電流使得載子與晶格容易發生碰撞，產生元件過熱的問題；而自旋電子元件則是利用自旋的自由度來傳輸資料，不同於傳統的電子元件，具有節能、低放熱及高速運作等特性。

自旋電子元件依材料系統的不同，主要分成三大類，(i) 以金屬磁性材料為主，利用外加磁場來改變磁化方向，故又稱為磁電子元件，如利用高磁阻材料所製造的非揮發性 (Non-Volatile) 記憶體—MRAM (Magnetic Random Access Memory)，具有高密度、讀取速率的特性，可望取代 DRAM (Dynamic Random Access Memory) 成為新一代的記憶體；(ii) 以半導體材料為主，利用光學取向或電學注入的方式，產生自旋極化電流，具有低耗能、快速的特性，如圖 1.1 的自旋場效電晶體 (Spin-FET)，其源極 (source) 及集極 (drain) 分別選用兩種自旋敏感的材料，當電流通入時，源極選擇自旋向上的電流，當自旋翻轉速度很快時，集極接受自旋向下的電子，此時元件導通為開路 (ON)，如圖 1.1(b)；反之，當自旋翻轉很慢時，則為關路 (OFF)，如圖 1.1(a) [1.2]。(iii) 以單個半導體量子點(環)為系統，將量子點(環)視為量子位元，當量子點 (環) 吸收一個光子時，產生一個電子及一個電洞，透過電子及電洞間的庫倫吸引力而形成激子 (exciton)，激子也可行輻射複合放光，這種獨特的雙能階的系統，可望應用在量子邏輯運算、量子通訊等[1.3]。

以半導體為主的自旋電子元件發展有四大課題：(1) 提升自旋極化率，使傳導電子的自旋方向具有高分辨性；(2) 了解影響自旋鬆弛的重要機制，如 Elliott-Yafet (EY), D'yakonov-Perel (DP), Bir-Aronov-Pikus (BAP) 及超精細機制 (hyperfine interaction) 等，設計出具有能維持長自旋相位時間的材料，使自旋電子達到目標元件時，仍然保持原輸出電流的極化方向性；(3) 提高自旋的注入率，由於金屬電極與半導體的電阻相差太大，必須找到合適的材料來取代金屬材料；(4) 有效且精準地探測材料的自旋極化鬆弛時間。整體來說，自旋電子元件的應用仍然有很多課題要克服，尤其材料的設計是影響自旋電子元件效率的重要關鍵，我們將致力於新材料的開發，期許設計出能在室溫下操作及具有高效能的自旋電子元件。

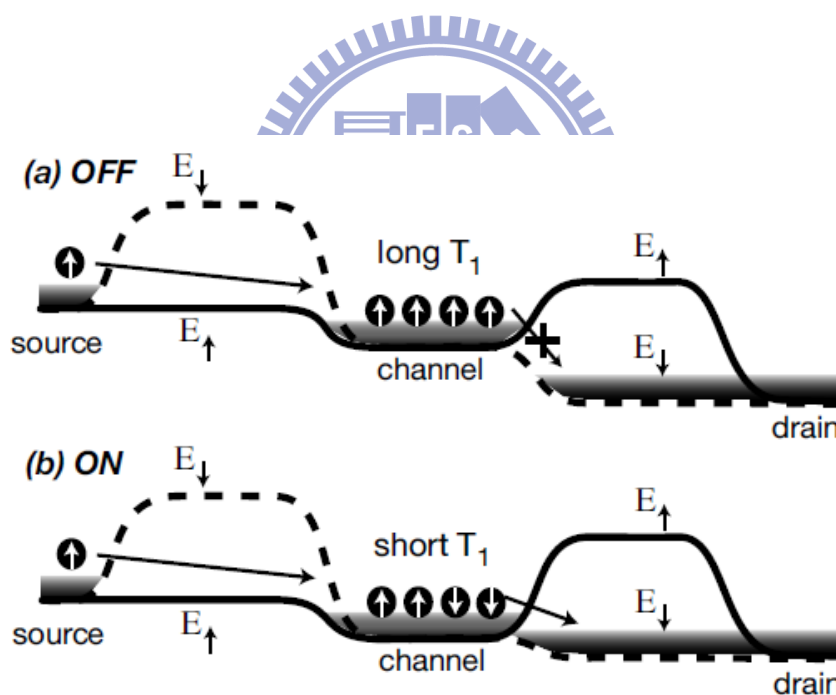


圖 1.1 自旋場效電晶體 (Spin-FET)

1-2 文獻回顧

1936 年 Mott 在鐵磁材料中，首次觀察到自旋電子的方向在傳輸的過程是可分辨的，開啟了自旋電子學廣泛的研究[1.4]。對於半導體自旋的研究，Elliott 與 Yafet 分別在 1954 和 1963 年提出半導體自旋鬆弛的重要機制 [1.5-1.6]，指出自旋電子可以經由電子-聲子散射，引發自旋翻轉 (Spin-flip)，而導致自旋的鬆弛。隨後在 1971 年，D'yakonov 和 Perel' 發現反稱不對稱 (inversion asymmetry) 的材料，電子自旋向上與自旋向下會產生自旋軌道耦合，而導致自旋鬆弛[1.7]，1975 年 Bir-Aronov-Pikus 則提出電子和電洞間的交換作用 (exchange interaction)，也會導致自旋的鬆弛[1.8]，這三個機制開啟了一系列對半導體自旋鬆弛的研究，1990 年 Datta 與 Das 提出自旋場效電晶體 (spin-field effect transistor)，為自旋電子元件的先鋒之一[1.9-1.10]，如圖 1.2 所示，電子自磁性金屬的源極 (source) 進入通道後，會感受到結構反演不對稱 (structure inversion asymmetry, SIA) 所引起的自旋軌道交互作用而做進動 (precession)，利用電壓調控電子到達集極 (drain) 時自旋的方向，不過有自旋注入效率太低及自旋去相位等問題，顯示材料的問題乃無法有效的克服。2002 年針對三五族半導體塊材在不同實驗條件下，對各鬆弛機制扮演的重要性作系統的整理，如圖 1.3 及圖 1.4 所示，結果顯示 EY 機制在大部分的情況下都不重要[1.11]，同年 D. J. Hilton 使用 pump probe 系統，偵測遠紅外線螢光，量測出本質 GaAs 的重電洞鬆弛時間只有 110 飛秒[1.12]。早期對自旋鬆弛的研究都著重在塊材，近年來開始研究低維度的量子點，K.Gündogdu 針對 InAs 量子點作研究，如圖 1.5 所示，在溫度 77K 下，量子點基態初始自旋極化率可達約 40%，電子與電洞的鬆弛時間分別為 120ps、29ps，其中電洞的鬆弛時間遠比在塊材長[1.13]。如圖 1.6，S. Marcinkevičius 對不同摻雜的 InAs 量子點，在溫度 80K 下量測，發現 p 摻雜的量子點自旋相位的維持最久，未摻雜量子點次之，n 摻雜最差[1.14]。

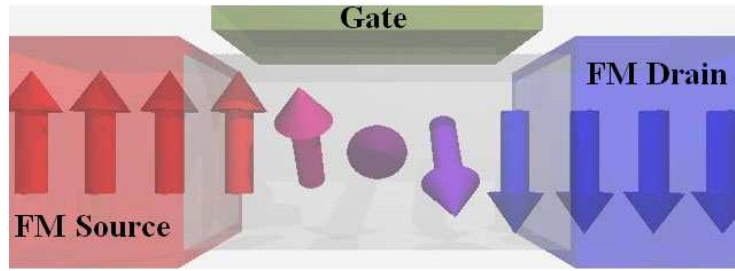


圖 1.2 Datta–Das 記憶體

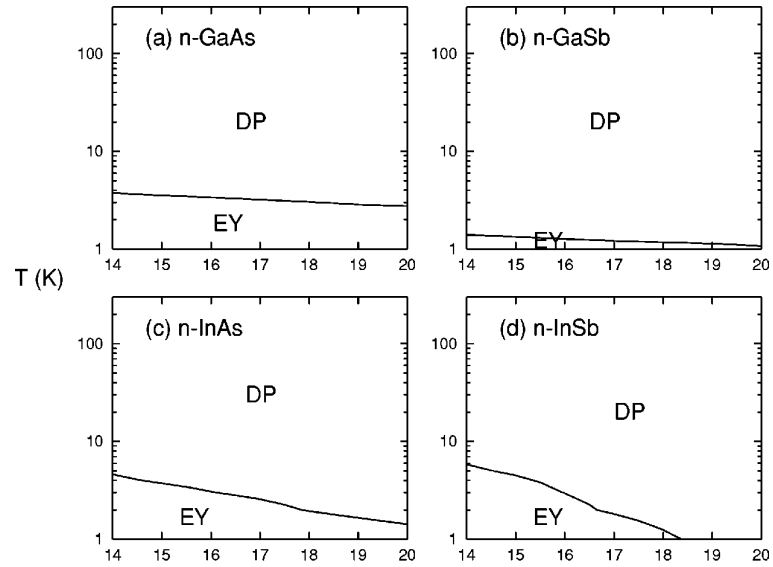


圖 1.3 n 型三五族半導體

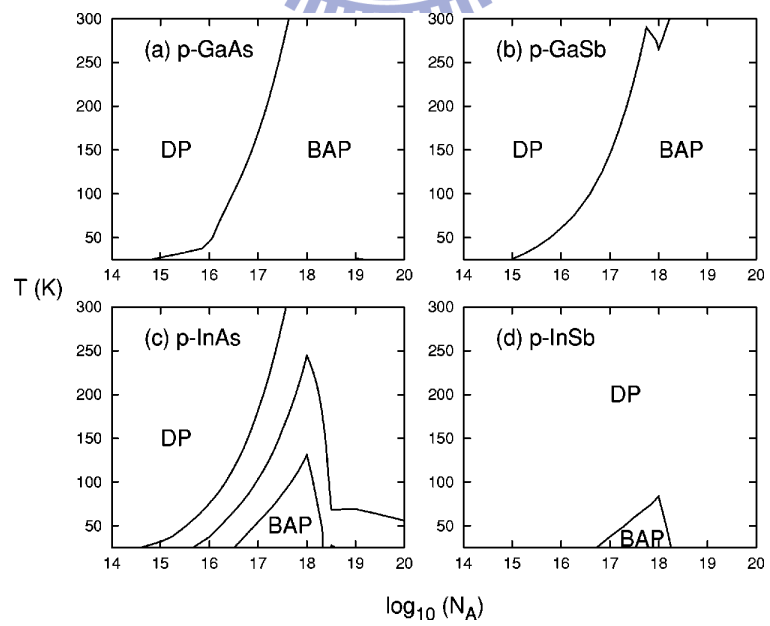


圖 1.4 p 型三五族半導體

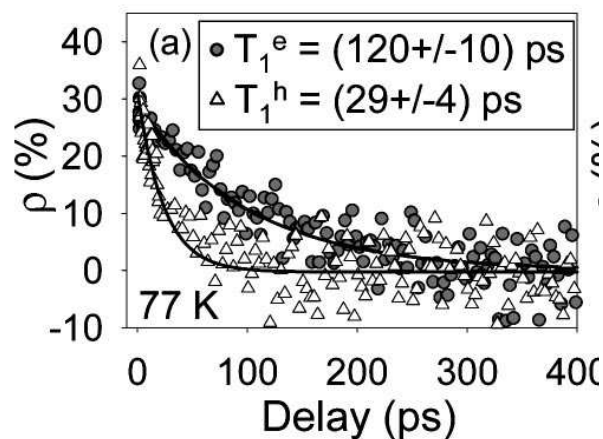


圖 1.5 電子與電洞的鬆弛時間解析圖

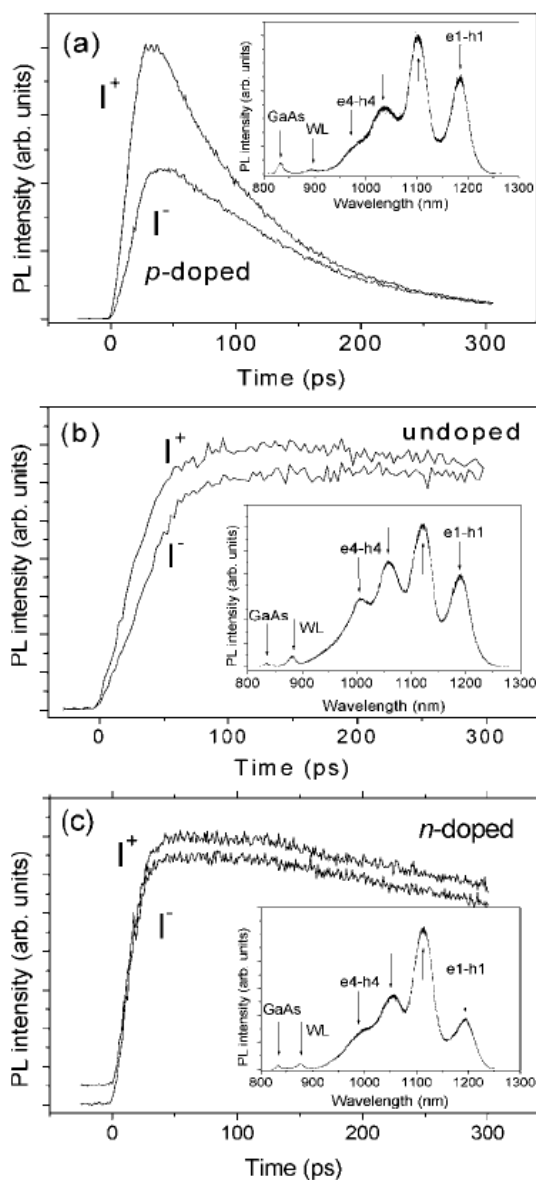


圖 1.6 不同摻雜量子點的鬆弛時間解析圖

1-3 研究動機

自組裝半導體奈米結構可以藉由調控大小及形狀來改變其電性與光性，吸引大家的關注，其中 InAs/GaAs 自組裝量子結構是熱門研究主題之一。近年來的研究發現，半導體量子點內的侷限能階導致自旋相位時間遠比高維度的材料長[1.15-1.16]，因此大家開始思考量子點在自旋電子元件的應用，如將單個量子點視為量子位元，當量子點吸收一個光子後，產生激子(exciton)，激子也可行輻射複合放光，此種獨特的雙能階的系統，可望應用在量子邏輯運算、量子通訊等[1-3]。

另一個與量子點同為零維度的自組裝結構——「量子環」，由於發展較晚，有關自旋的研究相當匱乏。但已有研究發現量子環不同於量子點的獨特性質，如單一旋轉對稱軸結構、基態轉移的震盪強度[1.17-1.18]；而在論文的第一部份，我們已經對摻雜的量子環載子動力學有了充分的認知，發現摻雜電洞的量子環其載子捕捉速率相較於未摻雜的量子環快，因此預期摻雜電洞的量子環對自旋電子的捕捉也會比未摻雜的快，減少自旋電子停留在 barrier 的時間，使得摻雜電洞的量子環在自旋相位的表現可能較佳。種種的因素，引起我們的好奇心去探索量子環的自旋特性。

我們從三維的 GaAs 深入至零維度材料-InAs/GaAs 量子環的自旋動態特性探討，希望完整剖析巨觀與介觀材料間的自旋特性差異。

1-4 參考文獻

- [1.1] 陳穗斌、張慶瑞，「自旋相關碰撞之電子傳輸描述」，物理雙月刊，廿六卷四期，577-580 頁，2004 年 8 月。
- [1.2] K.C. Hall and M.E. Flatte, *Appl. Phys. Lett.* 88 (16) (2006),
- [1.3] 盧炎田，「半導體量子點與量子資訊」，物理雙月刊，廿五卷四期，497-501 頁，2003 年 8 月。
- [1.4] N. F. Mott, *Proc. R. Soc. London, Ser. A* 153, 699 (1936).
- [1.5] R. J. Elliott, *Phys. Rev.* 96, 266 (1954).
- [1.6] Y. Yafet, *Solid State Phys.* 14, 1 (1963).
- [1.7] M. D'yakonov and V. Perel', *Sov. Phys. JETP Lett.* 13, 144 (1971).
- [1.8] G. L. Bir, A.G. Aronov and G. E. Pikus, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 69, 1382(1975).
- [1.9] S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.* 56, 665 (1990).
- [1.10] 林怡萍，「自旋的電性操控—淺談自旋軌道耦合」，物理雙月刊，廿八卷五期，792-795 頁，2006 年 10 月。
- [1.11] P. H. Song and K. W. Kim, *Phys. Rev. B* 66, 035207 (2002).
- [1.12] D.J. Hilton and C.L. Tang, *Phys. Rev. Lett.* 89, 146601(2002).
- [1.13] K. Gundogdu, K. C. Hall, *Appl. Phys. Lett.* 86, 113111(2005).
- [1.14] S. Marcinkevicius J. Siegert, and Q. X. Zhao, *Journal of Appl. Phys.* 100, 054310(2006).
- [1.15] S. Cortez, O. Krebs, S. Laurent, M. Senes, X. Marie, P. Voisin, R. Ferreira, G. Bastard, J-M. Ge´rard, and T. Amand, *Phys. Rev. Lett.* 89, 207401(2002).
- [1.16] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg, *Phys. Rev. Lett.* 87, 157401(2001).
- [1.17] R. J. Warburton, C. Schulhauser, D. Haft, C. Schäflein, K. Karrai, J. M. Garcia, W. Schoenfeld, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. B* 65, 113303(2002).
- [1.18] H. Pettersson, R. J. Warburton, A. Lorke, K. Karrai, J. P. Kotthaus, J. M. Garcia, and P. M. Petroff, *Physica E (Amsterdam)* 6, 510 (2000).

第二章 自旋極化與自旋鬆弛機制

2-1 自旋極化的產生—光學取向

如何有效的產生自旋極化 (spin polarization) 訊號成為發展自旋電子元件的重要關鍵，利用光或電的激發源來產生非平衡的自旋極化，當此外在激發源移除時，自旋將會回到平衡狀態。大部分的自旋電子元件都希望自旋極化時間夠長，而短的自旋時間則可應用在須快速切換開關的電子元件，可視材料的自旋特性應用在不同的電子元件上，以下利用光學取向 (optical orientation) 的方式介紹自旋極化光的產生[2.1]。

光學取向實質上就是角動量守恆定律 (conservation law of angular momentum) 的應用，電子的躍遷過程必須滿足選擇率 (selection rule)，角動量守恆只有在 $\Delta l = l' - l = \pm 1$ 的條件下發生，若物質被線性偏振光激發， $\Delta m = m' - m = 0$ 時，電子才會被激發；若激發光源為圓偏振光，則 Δm 必須為 ± 1 [2.3]，因此當右旋或左旋圓偏振光 (σ^+ 或 σ^-) 射入光電半導體後，圓偏振光的角動量則被轉移至被激發的電子和電洞，此時晶體內自旋極化 (spin polarization, P_n) 定義為 [2.2]

$$P_n = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}}, \quad (2.1)$$

其中 n_{\uparrow} 和 n_{\downarrow} 分別為自旋向上與自旋向下的密度

一般來說，直接能隙的材料 (如 GaAs) 的光電特性遠比非直接能隙的材料 (如 Si) 佳，由 Lampel 測量純矽的自旋極化值，只有約 0.1%，不具任何應用價值，故以 GaAs 為例來解釋光學取向的過程，如圖 2.1，選定角動量量子化 \hat{z} 軸垂直於晶體表面，以能量 $\hbar\omega$ 介於能隙 E_g 與 $E_g + \Delta_{SO}$ 間的 σ^+ 入射光 (z 方向) 激發，此時價帶的電子從 $|J=3/2; m_j = -3/2\rangle$ 和

$|J=3/2; m_j = -1/2\rangle$ 分別躍遷至 $|J=1/2; m_j = -1/2\rangle$ 和 $|J=1/2; m_j = 1/2\rangle$ ，將電子在塊材中價帶與導帶之間的轉移過程類比於電子在原子中 p 軌域與 s 軌域間的轉移過程，因此在單位時間內，電子在價帶與導帶之間的轉移機率即可由費米黃金定律 (Fermi golden rule) 近似得

$$\Gamma_{V \rightarrow C} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle c | H_{\text{int}} | v \rangle \right|^2 \delta(E_C - E_v - \hbar\omega), \quad (2.2)$$

$$\Rightarrow d\Gamma_{V \rightarrow C} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle c | H_{\text{int}} | v \rangle \right|^2 \delta(E_C - E_v - \hbar\omega) \rho(E_C) dE_C, \quad (2.3)$$

$$\Rightarrow \Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} \int \left| \langle c | H_{\text{int}} | v \rangle \right|^2 \delta(E_C - E_v - \hbar\omega) \rho(E_C) dE_C, \quad (2.4)$$

$$\therefore \Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle c | H_{\text{int}} | v \rangle \right|^2 \rho(E_C) \Big|_{E_C = E_v + \hbar\omega}, \quad (2.5)$$

其中

$|c\rangle$ 和 $|v\rangle$ 分別表示導帶與價帶的狀態，

H_{int} 是光與半導體交互作用漢米爾頓算符 (Hamiltonian operator)

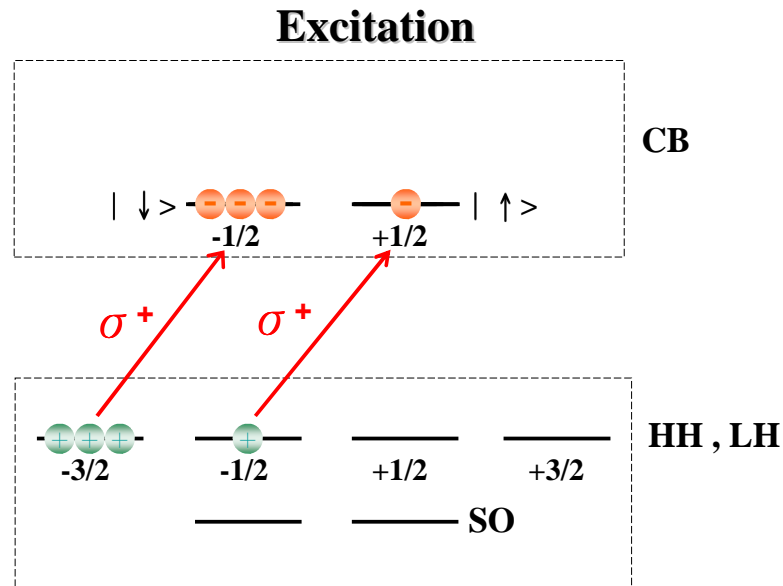


圖 2.1 GaAs 的光學取向

假設系統的漢米爾頓算符 (Hamiltonian operator , H) 是穩態項

$H_0 = \frac{P^2}{2m_c} + V(r)$ 及光與半導體間的交互作用項 H_{int} 之和 , $H = H_0 + H_{int}$, 而

H_{int} 可用電偶極 (electric dipole) 作用近似得

$$H_{int} = \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{R} \propto \begin{pmatrix} 1 \\ \pm i \\ 0 \end{pmatrix}^T \cdot \begin{pmatrix} X \\ Y \\ Z \end{pmatrix} = X \pm iY \propto \begin{cases} Y_{1,1} \\ Y_{1,-1} \end{cases}, \quad (2.6)$$

其中

$\boldsymbol{\varepsilon}$ 是入射光輻射偏振向量 ,

\mathbf{R} 是三個簡併函數 X 、 Y 、 Z 函數的向量 ,

$Y_{\ell\pm m}(\theta, \varphi) = \mp \sqrt{3/8\pi} \sin\theta \cdot e^{\pm i\varphi}$ 是球型諧波函數 (spherical harmonic function)

的角動量量子數 $\ell=1$ 、磁量子數 $m = \pm 1$ 項 : “+”和“-”分別對應於 σ^+ 和 σ^- ,

將不同能帶所對應的角動量部分的波函數與球型諧波函數整理至表 2.1 。

band	$ J; m_j\rangle$	angular part of wavefunction	in spherical harmonics
CB	$ 1/2; 1/2\rangle$	$ S \uparrow\rangle$	$Y_{00} \uparrow$
	$ 1/2; -1/2\rangle$	$ S \downarrow\rangle$	$Y_{00} \downarrow$
HH	$ 3/2; 3/2\rangle$	$ \frac{1}{2^{1/2}}(X + iY) \uparrow\rangle$	$Y_{11} \uparrow$
	$ 3/2; -3/2\rangle$	$ \frac{1}{2^{1/2}}(X - iY) \downarrow\rangle$	$-Y_{11}^* \downarrow$
LH	$ 3/2; 1/2\rangle$	$ \frac{1}{3^{1/2}}[\frac{1}{2^{1/2}}(X + iY) \downarrow + 2^{1/2}Z \uparrow]\rangle$	$\frac{1}{3^{1/2}}[Y_{11} \downarrow - 2^{1/2}Y_{10} \uparrow]$
	$ 3/2; -1/2\rangle$	$ \frac{1}{3^{1/2}}[\frac{1}{2^{1/2}}(X - iY) \uparrow - 2^{1/2}Z \downarrow]\rangle$	$-\frac{1}{3^{1/2}}[-Y_{11}^* \uparrow + 2^{1/2}Y_{10} \downarrow]$
SO	$ 1/2; 1/2\rangle$	$ \frac{2}{3}^{1/2}[\frac{1}{2^{1/2}}(X + iY) \downarrow - \frac{1}{2^{1/2}}Z \uparrow]\rangle$	$-\frac{2}{3}^{1/2}[Y_{11} \downarrow + \frac{1}{2^{1/2}}Y_{10} \uparrow]$
	$ 1/2; -1/2\rangle$	$ \frac{2}{3}^{1/2}[\frac{1}{2^{1/2}}(X - iY) \uparrow + \frac{1}{2^{1/2}}Z \downarrow]\rangle$	$\frac{2}{3}^{1/2}[-Y_{11}^* \uparrow - \frac{1}{2^{1/2}}Y_{10} \downarrow]$

表 2.1 導帶與價帶波函數整理表

由式(2.5)與式(2.7)，可以推導出在導帶產生自旋向上與自旋向下的電子之轉移機率 (transition probability) 為

$$\frac{\langle c' | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{R} | v' \rangle^2}{\langle c | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{R} | v \rangle^2} = \frac{\langle 1/2; -1/2 | Y_{11} | 3/2; -3/2 \rangle^2}{\langle 1/2; 1/2 | Y_{11} | 3/2; -1/2 \rangle^2}, \quad (2.7)$$

$$\Rightarrow \frac{n_{\downarrow}}{n_{\uparrow}} = 3, \quad (2.8)$$

則導帶初始電子極化率為

$$P_n(t=0) = P_0 = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}} = \frac{1 - 3}{1 + 3} = -\frac{1}{2}, \quad (2.9)$$

電洞受到自旋軌道耦合的影響，自旋極化迅速衰退。如圖 2.2 所示，利用 pump probe 系統，以波長 800nm (1.55 eV) 的 σ^+ 入射光激發，分別讀取 PL 波長為 3200 nm、3000nm 與 3800nm 的 σ^+ 和 σ^- ，由圖 2.3 的結果顯示，電洞的鬆弛時間只有約 110 fs，比電子的鬆弛時間還短很多，因此可假

設在電子與電洞熱平衡後，電洞已不具有自旋極化[2.4]。

當電子和電洞複合放射出 σ^+ 和 σ^- 光，如圖 2.4 所示，在熱平衡時間 τ 時，螢光的圓偏極化率 (the degree of circular polarization) 為

$$P_{\text{circular}} = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = \frac{(n_{\uparrow} + 3n_{\downarrow}) - (3n_{\uparrow} + n_{\downarrow})}{(n_{\uparrow} + 3n_{\downarrow}) + (3n_{\uparrow} + n_{\downarrow})} = -\frac{P_0}{2} = \frac{1}{4} = 25\%, \quad (2.10)$$

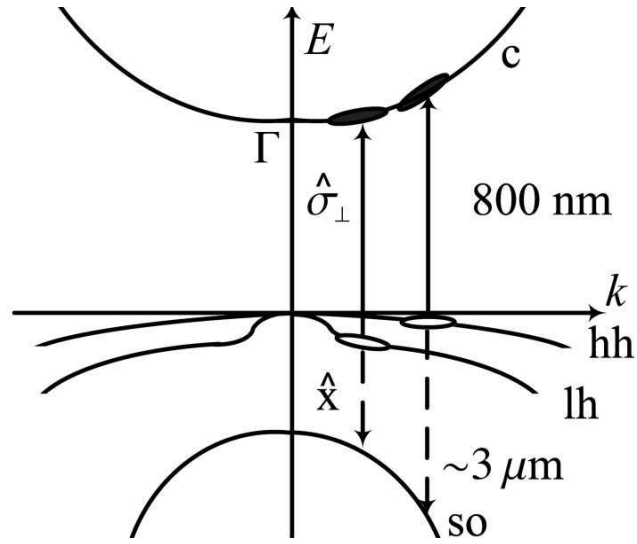


圖 2.2 電洞鬆弛時間解析量測示意圖

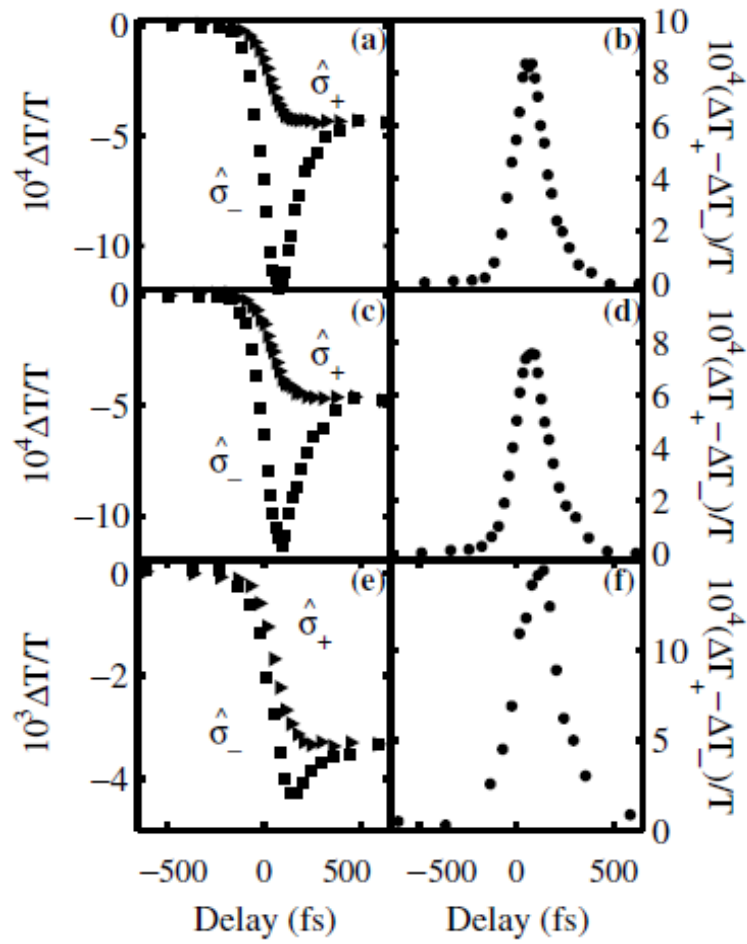


圖 2.3 電洞鬆弛時間解析結果

Recombination

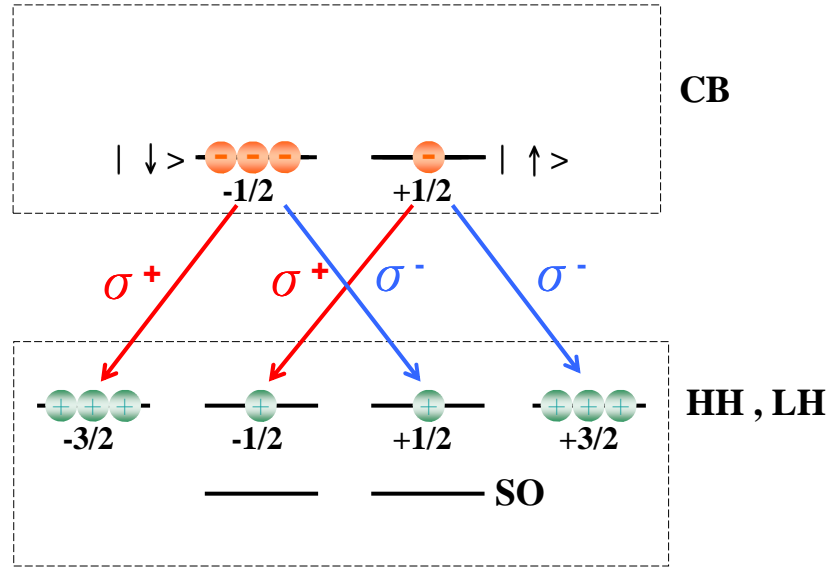


圖 2.4 電子與電洞複合放光



2-2 自旋軌道耦合(spin-orbit coupling, SOC)

考慮一個慢電子在真空及原子位能場 $V(r)$ 中，以速度 v 運動時，此時電子自旋軌道的交互作用力。以 Homitonian 表示為

$$H_{SO}(r) = \frac{\hbar}{4m_0c^2} (\nabla \bar{V}(r) \times \bar{v}) \cdot \bar{\sigma} = -\frac{\lambda_{vac}}{\hbar} \frac{1}{r} \frac{\partial V(r)}{\partial r} L \cdot \bar{\sigma}, \quad (2.11)$$

其中 $V(r)$ 是原子位能場， m_0 是自由電子質量， \bar{v} 是電子速度， L 是軌道角動量， $\bar{\sigma}$ 是 Pauli 向量矩陣，Dirac gap: $-2m_0c^2 \approx 1\text{MeV}$ ，因此可忽略電子在真空中 SOC 效應。以能量的尺度觀點來看，比較半導體材料的能隙

$E_g \approx 1\text{eV}$ 與在真空中的 Dirac gap: $-2m_0c^2 \approx 1\text{MeV}$ ，兩者相差約百萬倍，故半導體的 SOC 效應遠比在真空下大。三五族半導體材料由於結構的反稱不對稱造成 SOC，如缺乏反稱中心 (inversion center) 的系統，在同一個電子向量 k ($k=0$ 除外)，兩量子態的電子不再是簡併，造成 SOC 效應[2.5][2.6]。

一般來說，SOC 主要可以分為兩項，Dresselhaus 和 Rashba 項：

- (1) Dresselhaus 項來自於塊材反稱不對稱 (bulk inversion asymmetry, BIA)，是由於材料晶體結構缺乏反稱中心 (inversion center) 所造成，對三維系統，其 Homitonian 表示為

$$H_D^{3D} = \beta_{3D} (\sigma \cdot K), \quad (2.12)$$

其中 β_{3D} 是常數， $K_x = k_x (k_y^2 - k_z^2)$ 、 $K_y = k_y (k_z^2 - k_x^2)$ 、 $K_z = k_z (k_x^2 - k_y^2)$

， k 是電子動量。

- (2) Rashba 項則是來自於結構反稱不對稱 (structure inversion asymmetry, SIA)，是由於元件的異質結構 (heterostructure) 或外加電場所造成 $H_{SO}(r)$ 表示為

$$H_R = \alpha_R (\sigma_z k_y, -\sigma_y k_x), \quad (2.13)$$

2-3 自旋鬆弛

利用光學取向產生的非平衡的自旋極化，當這個外在的激發源移除時，自旋極化訊號的平衡過程即自旋鬆弛。首先以 Bloch equation 來定義自旋鬆弛時間，接著介紹自旋鬆弛的三大機制。

2-3-1 Bloch 方程式

假設 $\langle \vec{s} \rangle$ 是整體電子的總自旋，當在 z 方向外加一個靜磁場 B_0 和震盪場 (oscillating field) $B_1(t)$ ，則總磁場為 $B = B_0 \hat{z} + B_1(t)$ 。此時自旋電子的自旋鬆弛時間 (spin relaxation time, T_1) 與自旋去相位時間 (spin dephasing time, T_2) 可藉由 Bloch equation 來定義 [2.7]

$$\frac{\partial \langle \vec{s} \rangle_x}{\partial t} = \gamma (\langle \vec{s} \rangle \times B)_x - \frac{\langle \vec{s} \rangle_x}{T_2}, \quad (2.14)$$

$$\frac{\partial \langle \vec{s} \rangle_y}{\partial t} = \gamma (\langle \vec{s} \rangle \times B)_y - \frac{\langle \vec{s} \rangle_y}{T_2}, \quad (2.15)$$

$$\frac{\partial \langle \vec{s} \rangle_z}{\partial t} = \gamma (\langle \vec{s} \rangle \times B)_z - \frac{\langle \vec{s} \rangle_z - \langle \vec{s} \rangle_{0z}}{T_1}, \quad (2.16)$$

其中 $\gamma = g\mu_B / \hbar$ 是磁旋比 (gyromagnetic ratio)， g 是有效電子的 g 因子， β 是波耳磁子 (Bohr magneton)， g 是對 Zeeman 分裂的 g 因子。

自旋鬆弛時間 (T_1) 又稱為自旋縱向或自旋-晶格鬆弛時間 (spin longitudinal or spin-lattice relaxation time)，如圖 2.6 所示， $1/T_1$ 表示非平衡自旋系統 $\langle \vec{s} \rangle_z$ 沿著靜磁場 B_0 從高能態 $|\uparrow\rangle$ 藉由聲子放熱鬆弛至低能態 $|\downarrow\rangle$ 的速率大小；而自旋去相位時間 (T_2) 又稱為自旋橫向或自旋去相干鬆弛時間 (spin transverse or spin decoherence time)，描述垂直於靜磁場 B_0 方向的同相位自旋，受到自旋間的散射作用，造成它們以不同 Larmor 頻率進動，自旋相位逐漸損失的過程，和自旋鬆弛時間 T_1 不同，並不會有能量的損失。

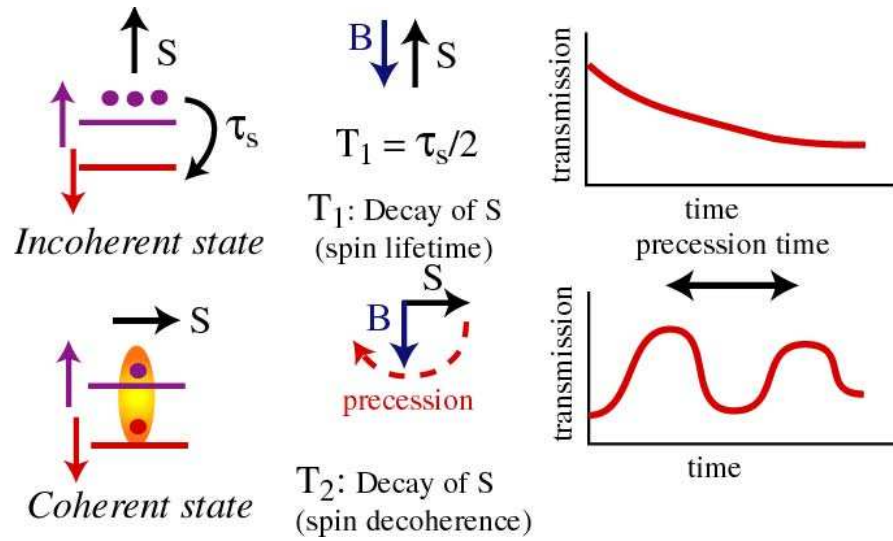


圖 2.6 自旋鬆弛時間 [2.8]

上述的過程都是不可逆的過程。對於局限的電子，如半導體的施體狀態 (donor states)，空間的不均勻性扮演很重要的角色，且經常影響 T_2 。為了描述這樣的可逆相位損失，利用自旋回聲 (spin-echo) 實驗量測，如圖 2.7 所示，標示為 T_2^* [2.1][2.9]。

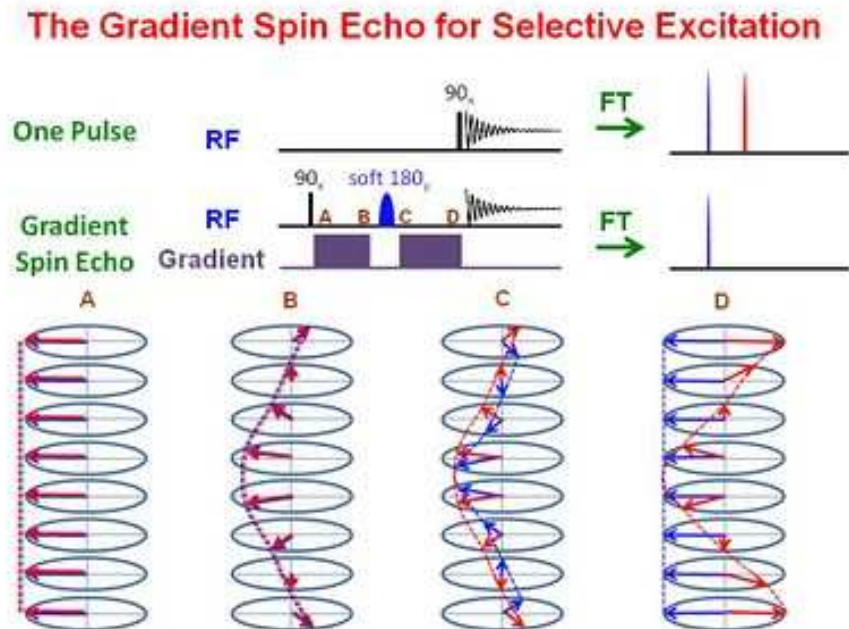
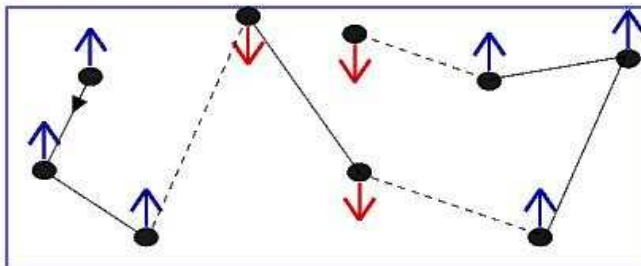


圖 2.7 自旋回聲實驗

2-3-2 自旋鬆弛機制

對半導體來說，有三種重要的自旋鬆弛機制，如圖 2.8 所示[2.10-2.11]：
 (1) Elliott-Yafet 機制與小能隙和強自旋耦合半導體有關，經由電子-聲子散射，引發自旋翻轉；(2) DP 機制發現在具有反演對稱的材料，導帶電子會發生自旋耦合，改變自旋電子動量，導致不可逆的自旋電子鬆弛；(3) BAP 機制是基於電子和電洞間的交換作用(exchange interaction)，尤其是 p 型半導體。

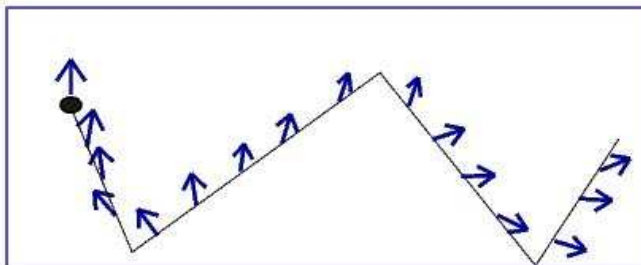
ELLIOTT-YAFET



METALS

SMALL GAP
SEMICONDUCTORS
(InSb)

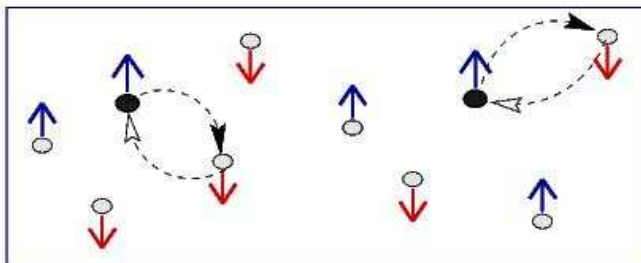
D'YAKONOV-PEREL'



n III-V (GaAs)

n II-VI (ZnSe)

BIR-ARONOV-PIKUS



p III-V (GaAs)

(GaSb)

圖 2.8 自旋鬆弛三大機制

2-3-2-1 EY 機制 (Elliott-Yafet Mechanism)

如圖 2.9 及圖 2.10 所示[2.11-2.12]，如果晶體離子誘導自旋軌道耦合伴隨著聲子的作用，自旋電子可以經由電子-聲子散射，引發自旋翻轉 (Spin-flip)，而導致自旋的鬆弛，由自旋軌道 Hamitonian 描述為 [2.9]

$$H_{SO} = \frac{\hbar}{4m_e^2 c^2} (\nabla V \times p) \cdot \sigma = \frac{1}{2m_e^2 c^2 r} \frac{\partial V}{\partial r} L \cdot S, \quad (2.17)$$

其中 V 是晶體的位能勢， p 是動量算符， σ 是 Pauli 自旋算符， L 是角動量算符，而 S 是自旋角動量算符。

此時單電子波函數 (Bloch function) 不再是 σ_z 的本徵態 (eigenstate)，而是 Pauli 自旋向上 $|\uparrow\rangle$ 與自旋向下 $|\downarrow\rangle$ 的混合

$$\Psi_{kn\uparrow}(\mathbf{r}) = [a_{kn}(\mathbf{r})|\uparrow\rangle + b_{kn}(\mathbf{r})|\downarrow\rangle] e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (2.18)$$

$$\Psi_{kn\downarrow}(\mathbf{r}) = [a_{-kn}^*(\mathbf{r})|\uparrow\rangle - b_{-kn}^*(\mathbf{r})|\downarrow\rangle] e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (2.19)$$

其中 k 是晶格動量 (lattice momentum)， n 是能帶指標 (energy index)

由給定能量為 E_k 的導帶電子的自旋鬆弛公式來做驗證

$$\frac{1}{\tau_{EY}} = A \left(\frac{k_B T}{E_g} \right)^2 \eta^2 \left(\frac{1-\eta/2}{1-\eta/3} \right) \frac{1}{\tau_p}, \quad (2.20)$$

其中 E_g 是能隙 (energy bandgap)， $\eta = \Delta_{SO} / (E_g + \Delta_{SO})$ ， Δ_{SO} 是價帶的自旋軌道分裂能， τ_p 是動量鬆弛時間， A 是無因次常數 (介於 2~6)。

由式 2.21 可看出 EY 鬆弛時間 τ_{EY} 正比於動量鬆弛時間 τ_p ，表示強動量散射會破壞初始極化率，而弱動量散射有助於維持初始極化率。

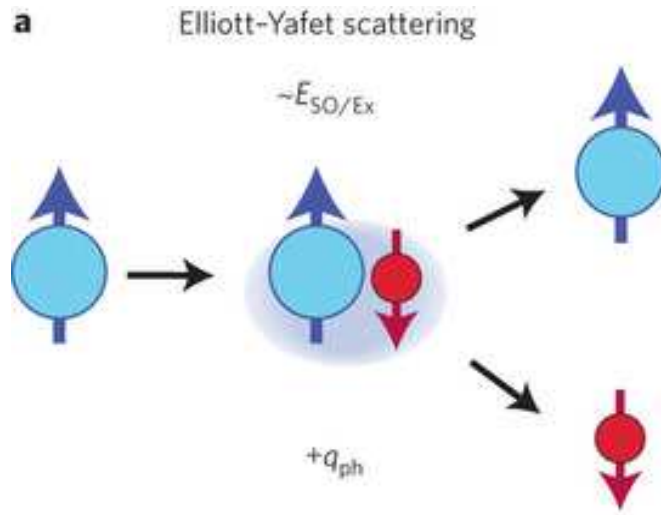
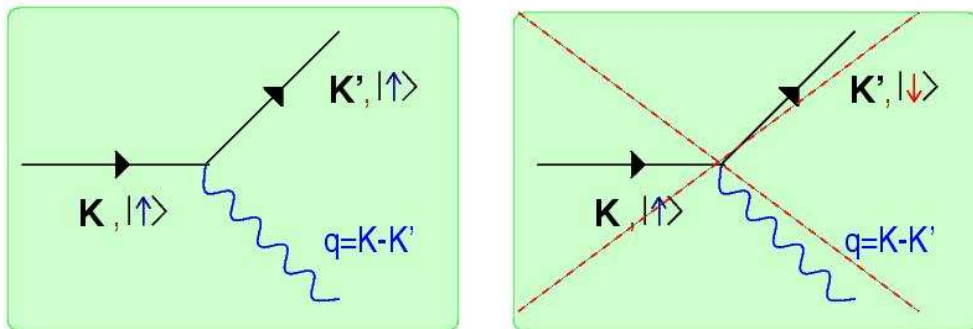


圖 2.9 EY 散射示意圖

1) No Spin-Orbit Coupling: $H = T + V$



2) With Spin-Orbit Coupling: $H + V_{SO}$, $V_{SO} = \lambda \mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$

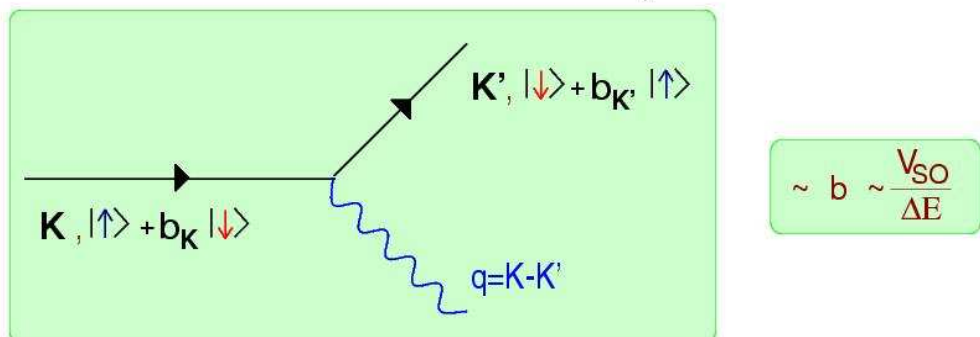


圖 2.10 自旋耦合導致自旋翻轉

2-3-2-2 DP 機制 (D'yakonov-Perel' Mechanism)

D'yakonov 和 Perel'發現反稱不對稱 (inversion asymmetry) 的材料，如 GaAs，Pauli 自旋向上 $|\uparrow\rangle$ 與自旋向下 $|\downarrow\rangle$ 為非簡併 ($\epsilon_{k\uparrow} \neq \epsilon_{k\downarrow}$)，導致在導帶中 Pauli 自旋向上 $|\uparrow\rangle$ 與自旋向下 $|\downarrow\rangle$ 會產生自旋軌道耦合，提供一個自旋電子鬆弛的管道[2.1]。

當材料缺乏反演對稱，自旋簡併將會沿著特定的 k 空間分裂，導帶的自旋分裂效應等效於一個與動量相關的內部磁場 $B(k)$ ，由 Hamiltonian 表示為[2.2]

$$H = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} + g^* \mu_B B(k) \cdot \sigma = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} + \hbar \Omega(k) \cdot \sigma, \quad (2.21)$$

其中 α 是測量導帶分裂大小的參數； $\Omega(k)$ 是拉莫爾進動頻率 (Larmor precession vector) 與電子動量方向有關的向量，表示為

$$\Omega(k) = \alpha \hbar^2 (2m_e^3 E_g)^{-1/2} \left[k_x (k_y^2 - k_z^2) \hat{x} + k_y (k_z^2 - k_x^2) \hat{y} + k_z (k_x^2 - k_y^2) \hat{z} \right], \quad (2.22)$$

如圖 2.11 所示[2.13]，DP 機制有兩種情況：(i) $\tau_p \Omega_{av} \geq 1$ 和

(ii) $\tau_p \Omega_{av} \ll 1$ ，其中 Ω_{av} 是真實的動量分布區域的 $\Omega(k)$ 平均大小， τ_p 是動量散射時間。

(i) 在 $\tau_p \Omega_{av} \geq 1$ 的情況下，即動量散射時間 τ_p 長於自旋電子轉動一圈的平均時間大小 τ_s ，自旋的去相位速率 $1/\tau_s$ 與 $\Omega(k)$ 會存在一個關係式， $1/\tau_s \approx \Delta\Omega$ ，說明當隨機的散射發生時，在導帶中 Pauli 自旋向上 $|\uparrow\rangle$ 與自旋向下 $|\downarrow\rangle$ 會產生自旋軌道耦合，自旋電子的動量會發生改變，導致 $\Omega(k)$ 發生變化，自旋電子會受到新的磁場的影響，沿著新的磁場行進，導致不可逆的自旋電子鬆弛[2.1]。

研究發現，自旋電洞 $-\frac{3}{2}$ 系統與自旋電子 $-\frac{1}{2}$ 的鬆弛機制是不同的。在價帶中，自旋電洞 $-\frac{3}{2}$ 的存在，使得電洞自旋密度變大（增加額外的狀態密度及自旋極化率）；而自旋軌道耦合影響價帶很大，在 τ_p 時間尺度內，使得自旋極化藉由去相位機制衰減，此機制可能會使自旋極化率衰減至零（完全去相位）或只有初始自旋極化率的部分值(未完全去相位)[2.14]。

(ii)在 $\tau_p \Omega_{av} \ll 1$ 的情況下，即 $\tau_p < \tau_s$ ，發生機率較型式(i)高，自旋鬆弛受到動量散射抑制，類似於核磁共振(nuclear magnetic resonance, NMR)中的運動窄化(motion narrowing)效應，由DP首次計算的結果為[2.15]

$$\frac{1}{\tau_{DP}} = \tilde{C} \alpha^2 \frac{(k_B T)^3}{\hbar^2 E_g} \tau_p, \quad (2.23)$$

其中 \tilde{C} 是只與散射機制有關的無因次因子(dimensionless factor)，而 α 是一個與立方能帶結構(cubic band-structure)有關的參數，近似為 $\alpha \approx \frac{4\eta}{\sqrt{3-\eta}} \frac{m_e}{m_0}$ ， m_e 是在 $k=0$ 時的有效電子質量， m_0 是自由電子質量。

由式 2.24 可以看出自旋鬆弛時間 τ_{DP} 與動量散射時間 τ_p 成反比關係，因此快速的動量散射將會導致更慢的自旋鬆弛。總結來說，微弱的動量散射會破壞初始極化率，而強的動量散射有助於維持初始極化率[2.2]。

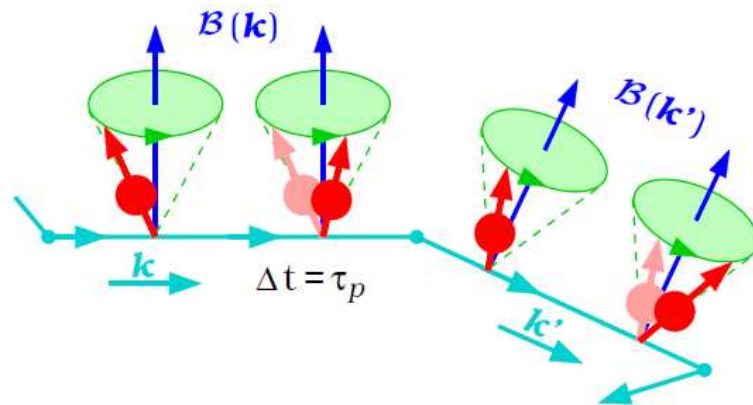


圖 2.11 DP 鬆弛機制

2-3-2-2 BAP 機制 (Bir-Aronov-Pikus Mechanism)

BAP 機制是基於電子和電洞間的交換作用(exchange interaction)，特別指含重摻雜的 p 型半導體，BAP 可能變成主宰機制，由 Hamiltonian 表示為 [2.2]

$$H_{\text{exc}} = AS \cdot J\delta(r), \quad (2.24)$$

其中 A 是在導帶與價帶狀態的交換積分(exchange integral)， S 是電子自旋， J 是電洞的角動量， $\delta(r)$ 是狄拉克 δ 函數(Dirac delta function)，而 r 是電子與電洞間的相對距離。

以臨界電洞濃度 (critical hole concentration, N_C) 的大小來判別半導體是否簡併，並分別定義 BAP 自旋鬆弛機制。

對於非簡併的電洞系統($N_A < N_C$)，自旋鬆弛時間為[2.16]

$$\frac{1}{\tau_s^{\text{BAP}}} = \frac{2\alpha_B^3 N_A v_k}{\tau_0 v_B} \left[\frac{n_{a,f}}{N_A} |\Psi(0)|^4 + \frac{5}{3} \left(1 - \frac{n_{a,b}}{N_A} \right) \right], \quad (2.25)$$

其中

$$v_k = \left(\frac{2E_c}{m_e} \right)^{1/2} \text{ 是導帶電子速度，}$$

$\alpha_B = (m_0 / m_R) \epsilon_0 a_0$ 是激子波耳半徑(exciton Bohr radius)，

$N_A = n_{a,f} + n_{a,b}$ 是電洞總濃度，

$n_{a,f}$ 、 $n_{a,b}$ 分別為自由、束縛電洞的濃度，

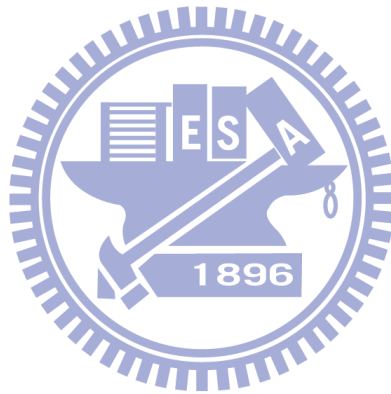
τ_0 是交換分裂常數(exchange splitting parameter)，

$|\Psi(0)|^2$ 是索末菲因子(Sommerfeld factor)；

對於簡併的電洞系統($N_A > N_C$)，自旋鬆弛時間為[2.17]

$$\frac{1}{\tau_s^{\text{BAP}}} = \frac{2\alpha_B^3 N_A v_k}{\tau_0 v_B} \left(\frac{E_c}{E_{\text{Fh}}} \right) \begin{cases} v_k = (2E_c / m_e)^{1/2} & \text{if } E_{\text{Fh}} < E_c (m_e / m_h) \\ v_k = (2E_c / m_h)^{1/2} & \text{if } E_{\text{Fh}} > E_c (m_e / m_h) \end{cases}, \quad (2.26)$$

τ_s^{BAP} 是由與溫度相關的 $|\Psi(0)|^2$ 和 $n_{a,f}$ 所主宰，對於簡併的電洞系統的系統來說， $|\Psi(0)|^2 = 1$ 且 $n_{a,f} = N_A$ 。而 τ_s^{BAP} 與 N_A 的關係，對於非簡併的電洞系統的系統來說， $1/\tau_s^{\text{BAP}}$ 正比於 N_A ，對於簡併的電洞系統的系統來說， $1/\tau_s^{\text{BAP}}$ 正比於 $N_A^{1/3}$ [2.1]。



2-4 參考文獻

- [2.1] I. Zutic, J. Fabian, and S. Das Sarma, Rev. Mod. Phys. 76, 323 (2004).
- [2.2] Nicholas J. Harmon, The Generation and Relaxation of Spin Polarization in Bulk Semiconductors (2007).
- [2.3] 黃迪靖, 「自旋解析光電子發射能譜研究」, 科學發展月刊, 第 29 卷第 6 期, 404-410 頁, 民國 90 年 3 月。
- [2.4] D.J. Hilton and C.L. Tang, Phys. Rev. Lett. 89, 146601(2002).
- [2.5] 林怡萍, 「自旋的電性操控—淺談自旋軌道耦合」, 物理雙月刊, 廿八卷五期, 792-795 頁, 2006 年 10 月。
- [2.6] 王律堯, 「自旋霍爾效應之簡介」, 台灣磁性技術協會會訓, 四十九期, 14-18 頁, 2009 年 9 月。
- [2.7] J. Fabian, Acta Physica Slovaca Vol. 57, No. 4&5, 565–907 (2007).
- [2.8] Group of Prof. Michael Flatté Optical generation of spin-polarized Distributions.
- [2.9] Glenn Facey, Gradient Spin Echoes for Selective Excitation (2010).
- [2.10] J. Fabian and S. Das Sarma. J. Vac. Sci. Technol. B17 (1999).
- [2.11] http://physik.kfunigraz.ac.at/~jaf/research/spintronics/spin_relaxation/relaxation.html
- [2.12] Markus G. Müntenberg, Nature Materials 9, 184 (2010).
- [2.13] Roland Winkler, University Hannover
- [2.14] Culcer, Dimitrie, Phys. Rev. B 76, 245322 (2007).
- [2.15] Ohms, T., Hiebbner, K., Schneider, H. C., Aeschlimann, M., " Spin- and energy relaxation of hot electrons at GaAs surfaces." (2005).
- [2.16] P. H. Song and K. W. Kim, Phys. Rev. B. 66, 035207 (2002).
- [2.17] K. Zerrouati, F. Fabre, G. Bacquet, J. Bandet, J. Frandon, G. Lampel, and D. Paget, Phys. Rev. B. 37, 1334 (1988).

第三章 樣品介紹與實驗設備

3-1 樣品介紹

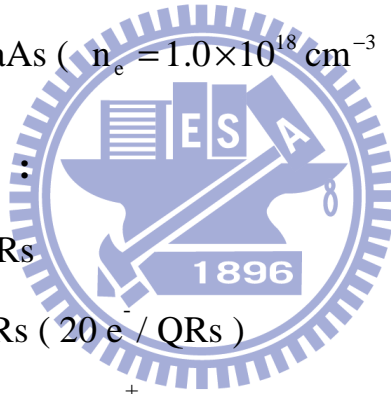
實驗的樣品主要分為兩部份，GaAs 塊材與 InAs/GaAs 自組裝量子環 (self-assembled Quantum rings)，而樣品已在論文的第一部份第三章介紹過，本節不再贅述。

一、GaAs 塊材：

- (1) 樣品一：undoped GaAs
- (2) 樣品二：p-doped GaAs ($n_h = 5.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)
- (3) 樣品三：n-doped GaAs ($n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$)
- (4) 樣品四：n-doped GaAs ($n_e = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)

二、InAs / GaAs 量子環：

- (1) 樣品五：undoped QRs
- (2) 樣品六：n-doped QRs ($20 e^- / \text{QRs}$)
- (3) 樣品七：p-doped QRs ($20 h^+ / \text{QRs}$)



3-2 實驗設備

自旋極化時間解析系統是利用圓偏振光激發樣品，產生不均衡自旋電子的機制，放射出不等量的 σ^+ 光與 σ^- 光。本節分別介紹偏極化光的產生及自旋極化時間解析光譜系統的架設。

3-2-1 偏極化的產生[3.1-3.2]

光可視為電磁波的一種型式，電磁波中電場 E 和磁場 B 振動方向恆為正交，具有相同的相位，可任選 E 或 B 為電磁波的偏振面，而光電效應大多數都由 E 所引起，因此以 E 來描述光電磁波及其偏振面。

當光在 z 軸上行進，偏振光可分為 x 及 y 兩個相互正交的向量，振動角頻率為 ω ，相位差為 θ ，則振動方程式為

$$x = a \sin \omega t, \quad (3.1)$$

$$y = b \sin(\omega t - \phi), \quad (3.2)$$

解式 3.1 及式 3.1 的聯立方程式，消去 t 得橢圓方程式

$$\frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{b^2} - \frac{2xy}{ab} \cos \phi = \sin^2 \phi, \quad (3.3)$$

(1) 當 $a \neq b$ 且 $\phi \neq 0$

此時電場振幅與 y 及電場振動方向隨著時間或行進變化，稱之為橢偏振光(elliptically polarized light)。

(2) 當 $a = b$ 且 $\phi = 0$ ，則 $x = y$

此時 x 與 y 同相位且光波電場振動方向不隨時間變化，即為線偏振光線偏振光(linearly polarized light)。

(3) 當 $a = b$ 且 $\phi \neq 0$ ，則 $x^2 + y^2 = a^2$

此時 x 與 y 具有相同的振幅且電場振動方向隨著時間或行進變化，則為圓偏振光(circularly polarized light)。

將上述的結果，整理至圖 3.1。

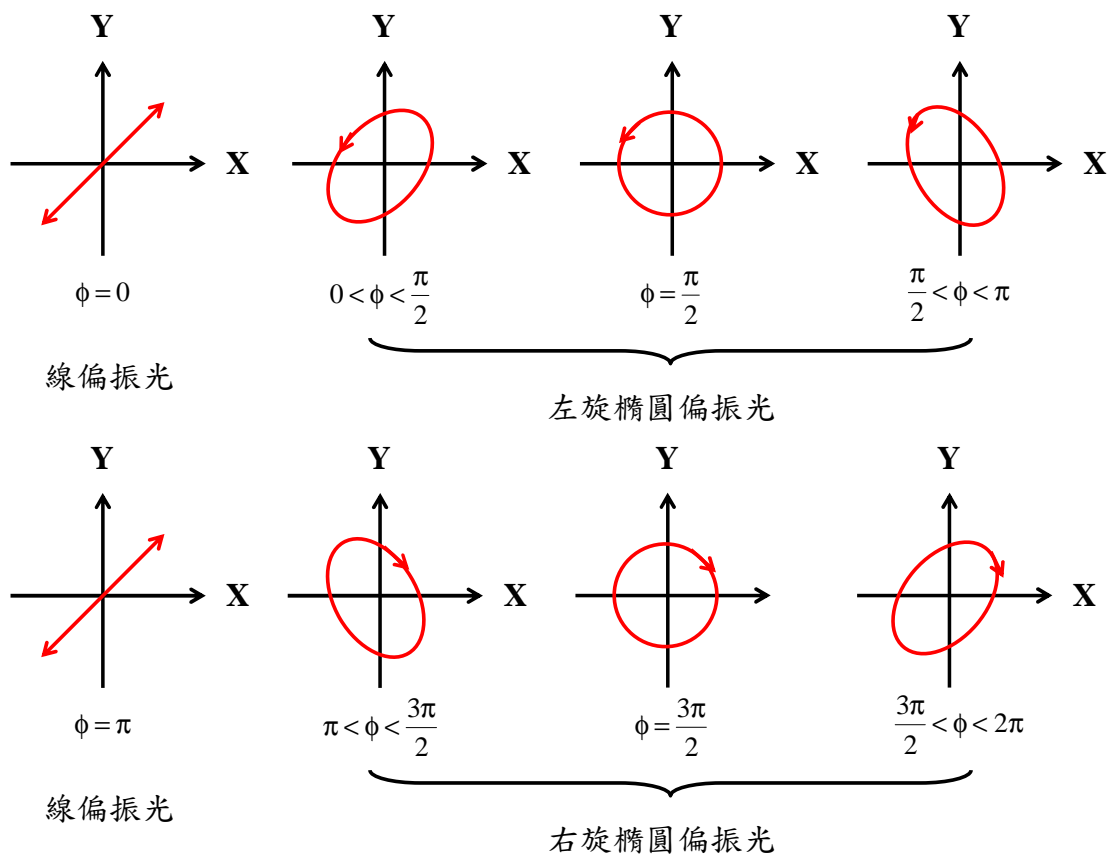


圖 3.1 不同型式的偏振光

利用雙折射晶體操作光的偏振態，如圖 3.2 所示，雙折射晶體內存在兩個相互正交的座標軸，分別稱為快軸及慢軸，可將入射的線偏振光分解成兩個延快軸及慢軸軸偏振的線偏振光，稱之為快軸光及慢軸光。如果入射光偏振光與快軸夾 $\theta = \frac{\pi}{4}$ ，則快軸光與慢軸光的時差為

$$\Delta t = \frac{D}{v_o} - \frac{D}{v_e} = \left(\frac{n_o}{C} - \frac{n_e}{C} \right) D, \quad (3.4)$$

而相位差為

$$\Delta\phi = 2\pi\nu\Delta t = \left(\frac{2\pi\nu}{C} \right) (n_o - n_e) D = \left(\frac{2\pi\nu}{\lambda_o} \right) (n_o - n_e) D, \quad (3.5)$$

其中 D 為晶體厚度， n_o 、 n_e 分別為快軸及慢軸的折射係數

- (1)當 D 的厚度滿足 $\Delta\phi = \frac{\pi}{2}$ ，此晶體稱為 1/4 波片，此時兩道出射光的相位差為 $\frac{\pi}{2}$ ，其合成光即為圓偏振光。如果入射光的偏振方向與快軸相交不等於 $\frac{\pi}{4}$ ，則出射光則為橢圓偏振光。
- (2)當 D 的厚度滿足 $\Delta\phi = \frac{\pi}{2}$ ，此晶體稱為 1/2 波片，此時出射光仍然為線偏振光，只是出射光旋轉 2θ 。

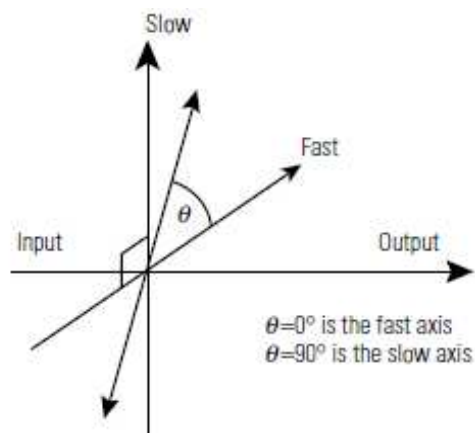


圖 3.2 雙折射晶體座標圖

Input	Output
Quarter-wave	
Linear, $\theta=45^\circ$	Right circular
Linear, $\theta=-45^\circ$	Left circular
Right circular	Linear, $\theta=-45^\circ$
Left circular	Linear, $\theta=45^\circ$
Linear, any $\theta \neq 45^\circ$	Elliptical
Half-wave	
Linear, angle θ	Linear, angle $-\theta$
Left circular	Right circular
Right circular	Left circular
Any wave plate	
Linear, $\theta=0^\circ$ or 90°	Unchanged

表 3.1 光的偏振態轉換

3-2-2 自旋鬆弛時間解析系統架設

如圖 3.3 所示，自旋極化鬆弛時間解析系統是以 Up-conversion 系統為基本架構，再額外架設兩組 1/4 波片(quarter wave plate, QWP)，第一組架設在分光鏡 BS 與 F2 之間，稱之為 QWP1；第二組則架設在收光鏡 AC 和聚焦鏡 L2 之間，稱之為 QWP2。

如圖3.4所示，由於系統的雷射光預設為線偏振光，使用 QWP1 將線偏振光轉換成圓偏振光並激發樣品，產生不等量的左旋光及右旋光，此時再利用 QWP2 將左、右旋光分別轉換成與原本系統雷射相同偏振方向的光，個別掃描一張時間解析光譜，經由電腦運算即可得到自旋極化解析光譜。

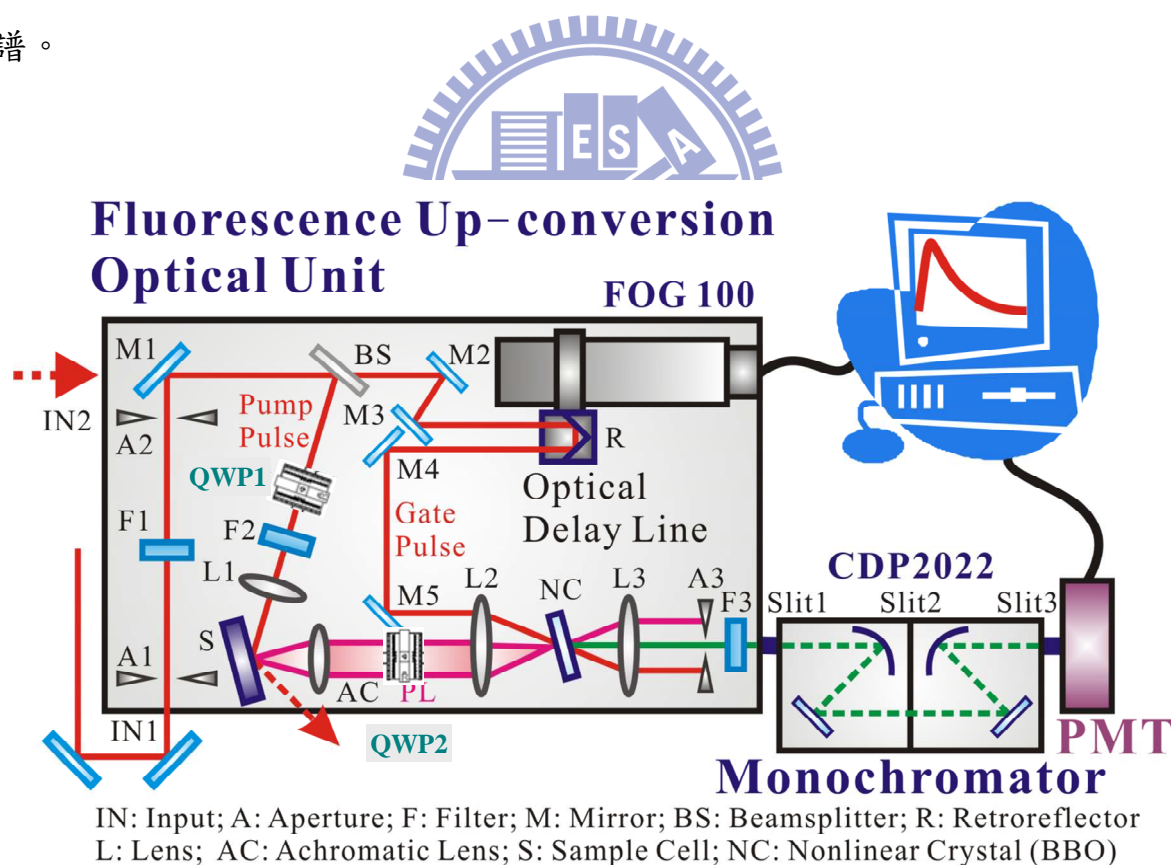
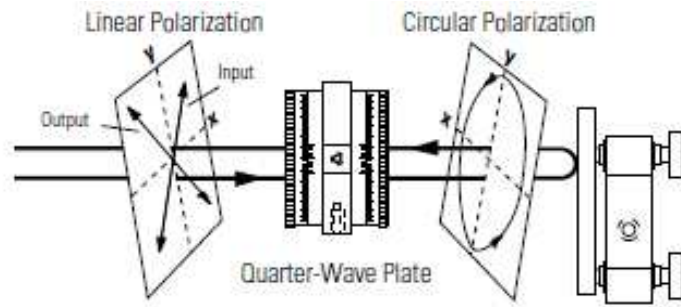


圖 3.3 自旋極化鬆弛時間解析系統

(a)



(b)

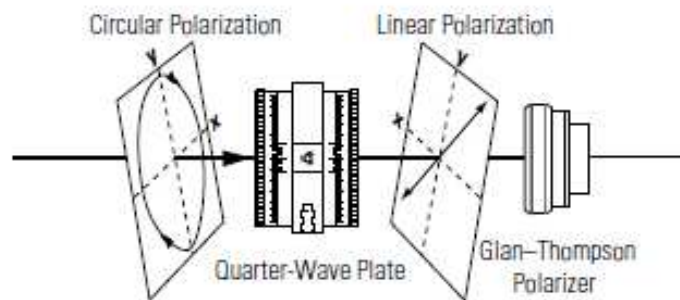


圖 3.4 四分之一波片

3-3 參考文獻

[3.1] 丁勝懋，雷射工程導論，四版，中央圖書出版社，民國九十二年。

[3.2] Polarization and Polarization Control, NEW FOCUS, Inc.

[3.3] 林建宏，「砷化銦/砷化鎵量子點與量子環的載子動力學」，碩士論文 (2008)。

第四章 實驗結果與討論

本章我們從三維的 GaAs 深入至零維度材料-InAs/GaAs 量子環，做一系列 III-V 半導體材料的自旋動態特性探討。

4-1 體材料 GaAs 的自旋動力學

對半導體來說，有三種重要的自旋鬆弛機制，(1) Elliott-Yafet 機制；(2) DP 機制；(3) BAP 機制。藉由摻雜電子或電洞及不同的光激發強度，以釐清這些機制在不同的實驗條件下所扮演的角色。

4-1-1 本質 GaAs 的自旋動力學

圖 4.1(a)為本質 GaAs 在室溫下的時間解析光譜，以能量 $\hbar\omega = 1.59\text{eV}$ ，載子密度 $N_{\text{ex}} = 5.0 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ 的 σ^+ 光激發。並將 $I^+(t)$ 與 $I^-(t)$ 代入自旋極化率公式

$$P_{\text{circular}} = \frac{I^+(t) - I^-(t)}{I^+(t) + I^-(t)}, \quad (4.1)$$

由圖 4.1(b)所示，可以觀察到在時間零點的時候，PL 立即分裂成 σ^+ 光與 σ^- 光，此時有最大的自旋極化率 ($P_0 \approx 50\%$)，然後自旋極化開始鬆弛，主要分為兩個區域，(1) 短程 ($t < 1\text{ps}$)：自旋極化率從 50% 迅速下降至 15%；(2) 長程 ($t > 1\text{ps}$)：自旋極化緩慢的鬆弛，大約在 90 ps 之後， $I^+(t)$ 和 $I^-(t)$ 逐漸重合，此時自旋極化率慢慢趨近至零。

針對圖 4.1(b)的結果，利用 $P(\%) = A_1 e^{-t/\tau_1} + A_2 e^{-t/\tau_2}$ 來擬合，如圖 4.2 所示，得到兩段自旋極化生命期 τ_1 及 τ_2 ，分別為 0.38 ps 及 50.49 ps，短程的自旋鬆弛時間 τ_1 主要是由電洞鬆弛機制所造成，時間只有約幾百 fs，我們將在章節 4-1-3-3 獨立探討，現在把焦點放在長程的電子自旋鬆弛時間。

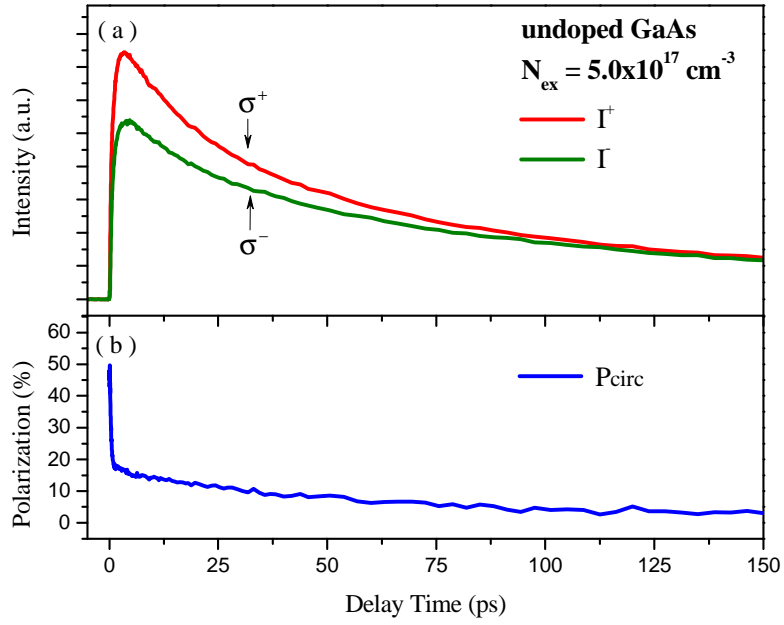


圖 4.1 (a)本質 GaAs 時間解析光譜 (b)對應(a)之自旋極化率鬆弛過程

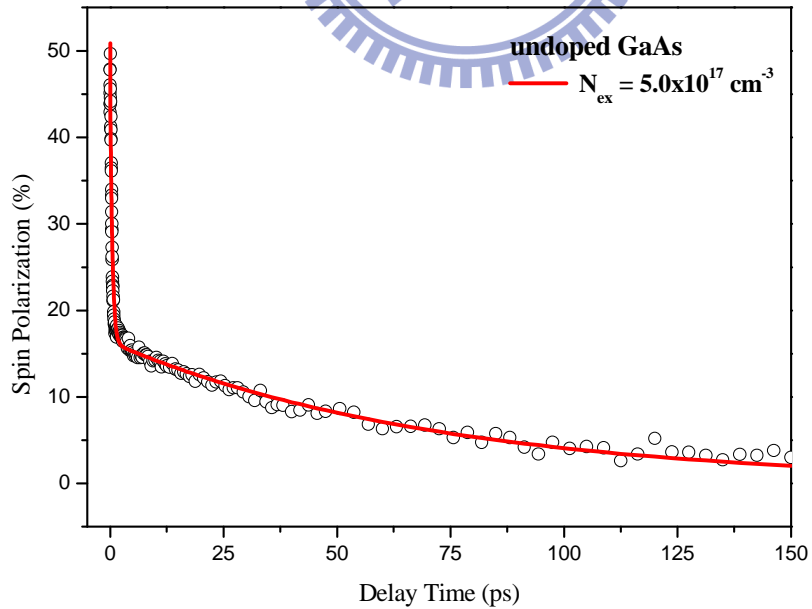


圖 4.2 本質 GaAs 之自旋極化率擬合曲線

圖 4.3 是本質 GaAs 在不同激發密度下，自旋極化率的擬合曲線，圖 4.4 是圖 4.3 擬合所得的自旋鬆弛時間隨激發密度變化趨勢圖，表 4.1 則列出擬合的量化數據。

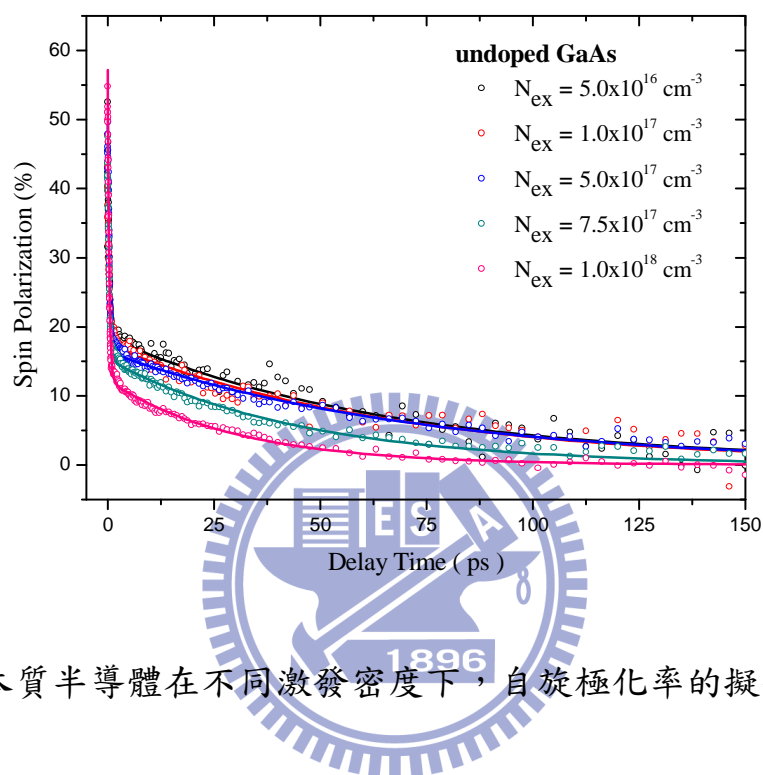


圖 4.3 本質半導體在不同激發密度下，自旋極化率的擬合曲線

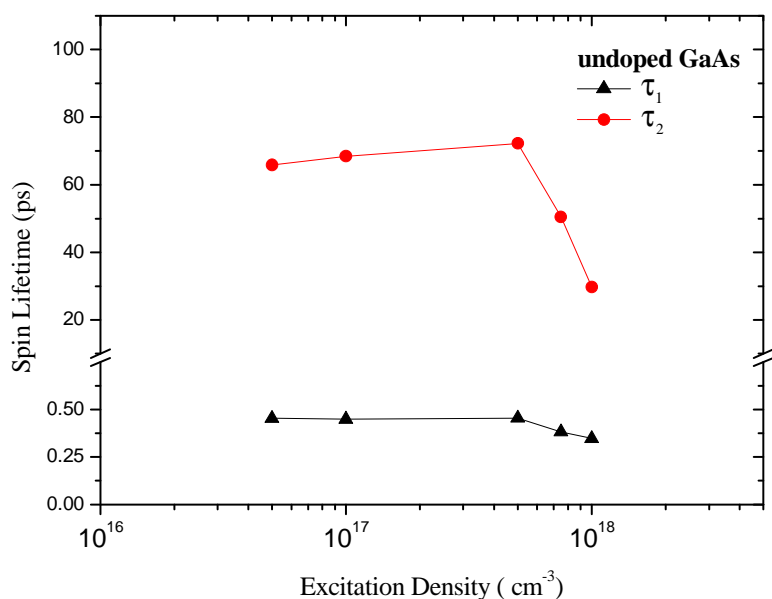


圖 4.4 本質 GaAs 在不同激發密度的自旋鬆弛時間

Spin Lifetime (ps) \ N_{ex} (cm^{-3})	5.0×10^{16}	1.0×10^{17}	5.0×10^{17}	7.5×10^{17}	1.0×10^{18}
τ_1	0.45	0.46	0.45	0.38	0.35
τ_2	65.80	77.39	72.18	50.49	29.73

表 4.1 本質 GaAs 在不同激發密度的自旋鬆弛時間

自旋鬆弛時間 (τ_2) 隨著激發密度增加，先緩慢地遞增然後快速地遞減，呈現非單調的變化。由圖 4.4 所示，當激發密度 N_{ex} 由 $5.0 \times 10^{16} cm^{-3}$ 增加至 $5.0 \times 10^{17} cm^{-3}$ 時，自旋鬆弛時間微幅遞增，這是因為系統處於 DP 機制的強動量散射場 ($\tau_p \Omega_{av} \ll 1$) [4.1-4.2]，隨著激發密度的上升，自旋電子的鬆弛受到強動量散射的抑制，不易發生自旋耦合，使得自旋鬆弛時間上升。當激發密度 N_{ex} 由 $1.0 \times 10^{17} cm^{-3}$ 增加至 $1.0 \times 10^{18} cm^{-3}$ 時，自旋鬆弛時間反而加速減少，主要是受到 DP 機制的非均勻擴展 (inhomogeneous broadening) $\langle |\Omega_k|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle \propto N_{ex}^2$ 的影響 [4.3]，隨著激發密度的增加，自旋電子彼此以不同 larmor 頻率進動，自旋耦合效應提升，導致自旋快速地鬆弛。

4-1-2 P 型 GaAs 的自旋電子動力學

對於 P 型半導體，除了 DP 機制尚須考慮 BAP 機制。BAP 機制是基於電子和電洞間的交換作用(exchange interaction)，特別指含重摻雜的 p 型半導體，BAP 可能變成主宰機制[4.4]。

4-1-2-1 變激發密度之初始極化率

選用摻雜電洞濃度 $n_h = 5.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 p-GaAs，如圖 4.5 為 p-GaAs 以能量 $\hbar\omega = 1.59 \text{ eV}$ 的 σ^+ 光，在不同激發密度下，自旋極化率的擬合曲線，圖 4.8 是時間為零時的自旋極化率數值，可以發現初始極化率 $P(t=0)$ 幾乎維持定值約 25%，與理論值一致。由圖 4.6 可以看出，當激發密度越小，自旋極化率在 1ps 前的快速鬆弛越不明顯，可見摻雜電洞扮演很重要的角色。

利用簡易的運算過程來驗證初始極化率，如圖 4.7 所示，選定角動量子化 \hat{z} 軸垂直於晶體表面，以能量 $\hbar\omega = 1.59 \text{ eV}$ 介於能隙 $E_g = 1.42 \text{ eV}$ 與 $E_g + \Delta_{SO} = 1.76 \text{ eV}$ 的 σ^+ 入射光(z 方向)激發，產生具自旋極化的電子電洞對，在導電帶中 $|J=1/2; m_j = -1/2\rangle$ 和 $|J=1/2; m_j = 1/2\rangle$ 狀態的電子數比為 3:1，而價電帶中 $|J=3/2; m_j = -3/2\rangle$ 與 $|J=3/2; m_j = -1/2\rangle$ 狀態的電洞數比亦為 3:1。

整體來說，激發密度 $N_{ex} = 1.0 \times 10^{16} \sim 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 皆小於摻雜濃度 $n_h = 5.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ，因此在光激發後價帶的電洞可視為未極化。因此在電子電洞復合的過程，如圖 4.8，整個自旋鬆弛機制都是由電子主宰，當電子和電洞復合放射出 σ^+ 和 σ^- 光，螢光的理論圓偏極化率(the degree of circular polarization)為

$$P_{\text{circular}} = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = \frac{\left(\frac{1}{4}n_{\uparrow} + \frac{3}{4}n_{\downarrow}\right) - \left(\frac{3}{4}n_{\uparrow} + \frac{1}{4}n_{\downarrow}\right)}{\left(\frac{1}{4}n_{\uparrow} + \frac{3}{4}n_{\downarrow}\right) + \left(\frac{1}{4}n_{\uparrow} + \frac{3}{4}n_{\downarrow}\right)} = 25\%, \quad (4.2)$$

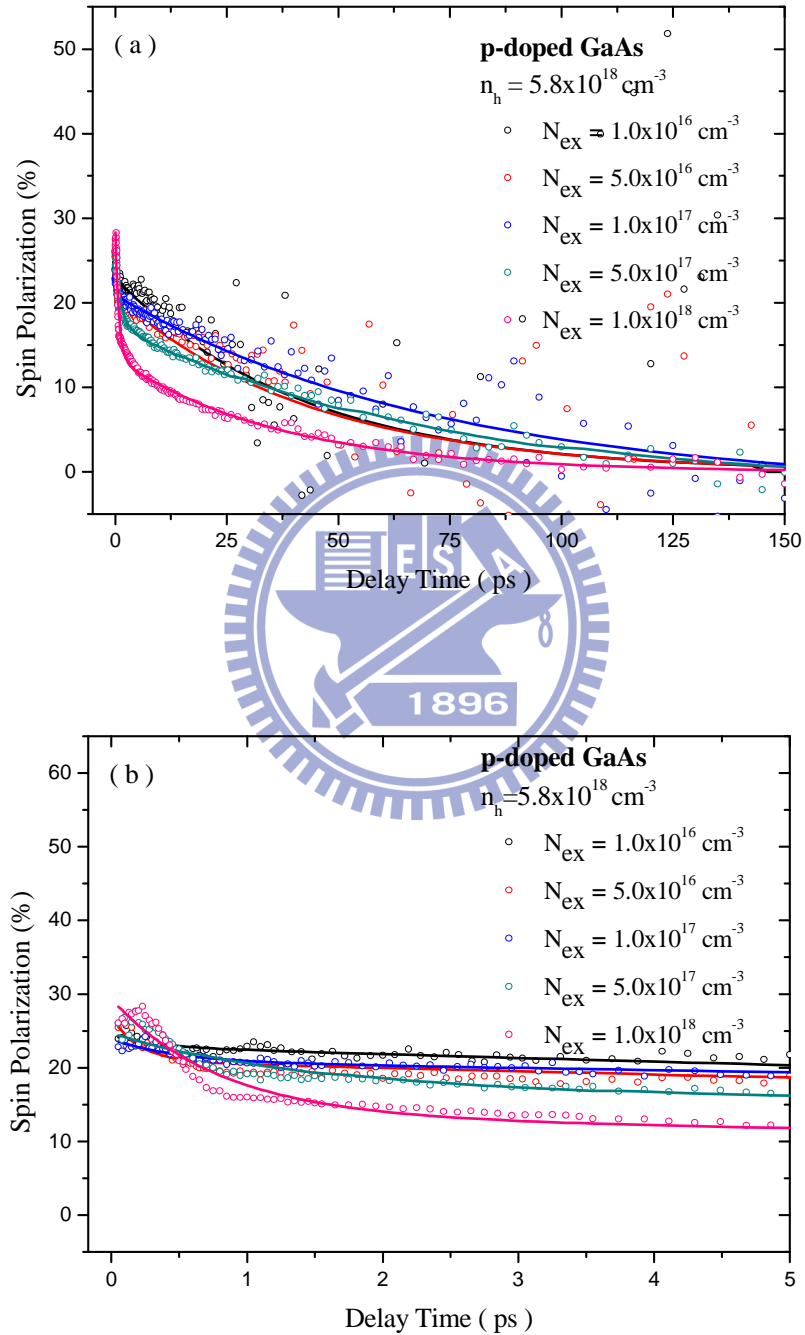


圖 4.5 p-GaAs 的自旋極化擬合曲線 (a) 長程(150 ps) (b) 短程(5 ps)

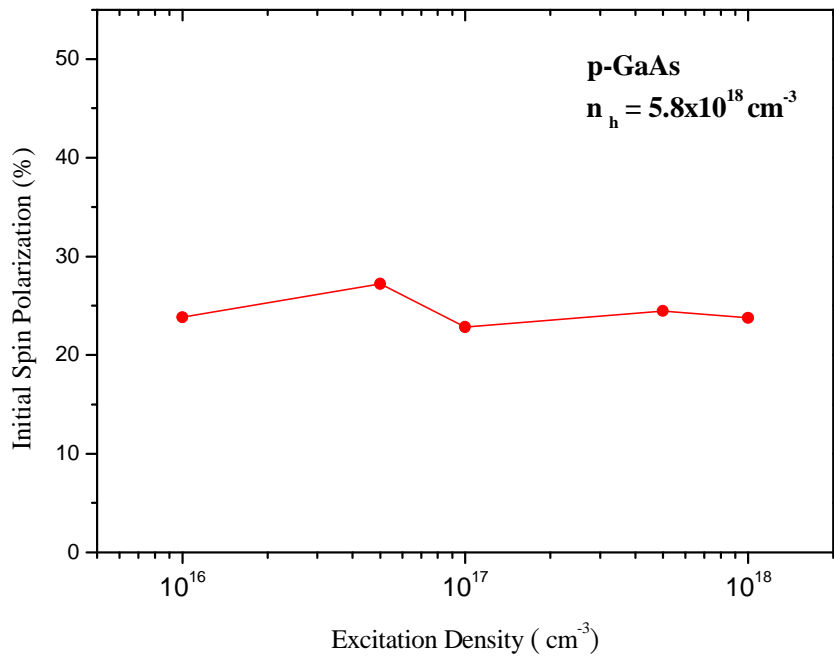


圖 4.6 p-GaAs 在不同激發密度的初始自旋極化率

Excitation (p-GaAs)

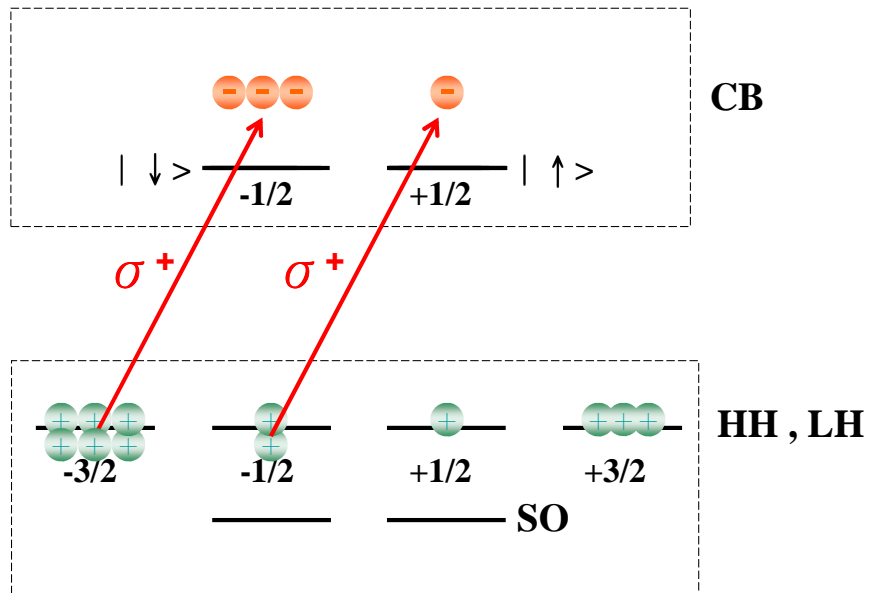


圖 4.7 p-GaAs 以 σ^+ 光激發過程

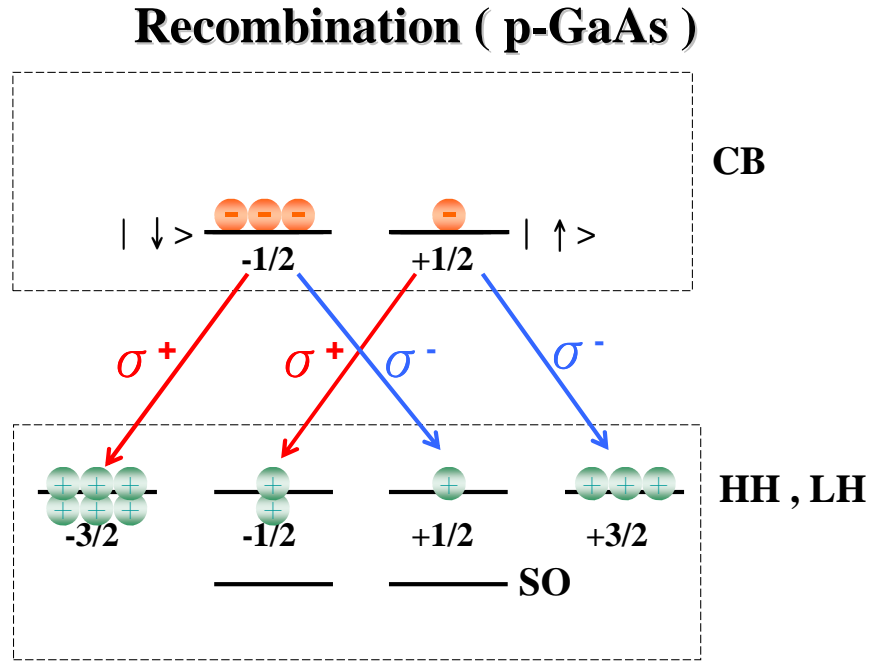


圖 4.8 p-GaAs 輻射複合過程

4-1-2-2 變激發密度之自旋鬆弛時間

為了釐清在室溫下 BAP 機制是否影響 p-GaAs 的自旋鬆弛機制，因此與本質 GaAs 相互比較。由圖 4.9 所示，激發密度 N_{ex} 由 $5.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 增加至 $5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 時，自旋鬆弛時間 τ_2 微幅的上升，是因為處於 DP 機制的強動量散射場 ($\tau_p \Omega_{av} \ll 1$)，這是隨著激發密度的上升，自旋電子的鬆弛受到強動量散射的抑制，使得自旋鬆弛時間 τ_2 上升。但激發密度 $5.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 與 $5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 間，p-GaAs 的自旋鬆弛時間皆比本質 GaAs 短，顯示 BAP 機制在室溫下乃相當重要。當激發密度 N_{ex} 由 $1.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 增加至 $1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 時，自旋鬆弛時間 τ_2 反而加速減少，主要是受到 DP 機制的非均勻擴展 (inhomogeneous broadening) $\langle |\Omega_k|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle \propto N_{ex}^2$ 的影響 [4.3]，BAP 機制不再重要，隨著激發密度的增加，Dresselhaus 自旋耦合

$$H_{SO} = (2\gamma/g\beta) \left[\hat{x} k_x (k_y^2 - k_z^2) + \hat{y} k_y (k_z^2 - k_x^2) + \hat{z} k_z (k_x^2 - k_y^2) \right]$$

效應加速提升，

導致自旋快速地鬆弛[4.3]。而短程 (<1 ps) 的快速鬆弛並不明顯，因此自旋鬆弛時間 τ_1 並無實質上的意義，故不深入探討。

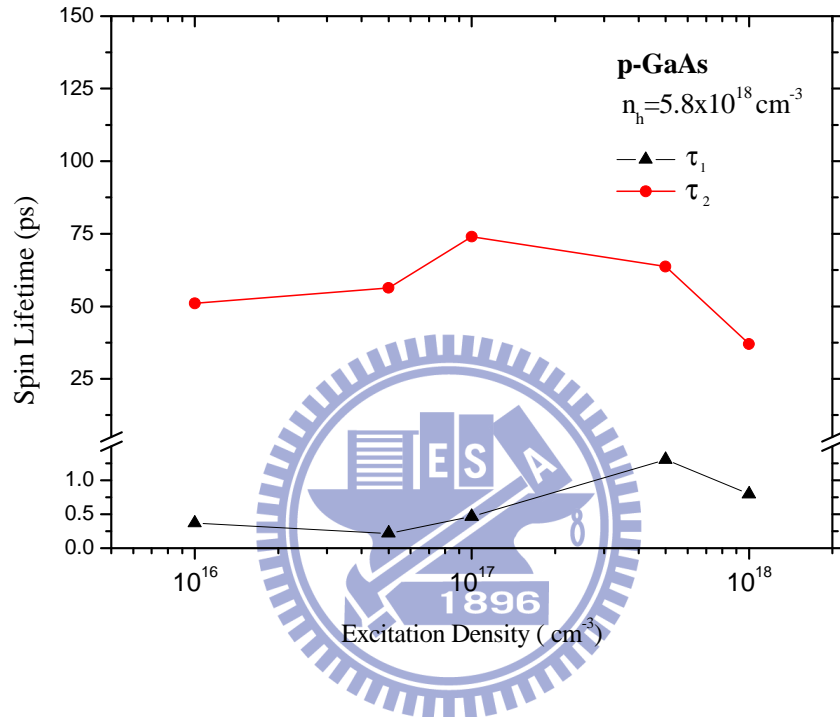


圖 4.9 p-GaAs 在不同激發密度的自旋鬆弛時間

4-1-3 N 型 GaAs 的自旋電洞動力學

對於 N 型半導體，由於缺乏電洞，自旋鬆弛行為由電洞所主宰且可忽略 BAP 機制。

4-1-3-1 變激發密度及不同摻雜濃度之自旋極化率

選用摻雜電洞濃度 $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 與 $n_e = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 n-GaAs，如圖 4.10、圖 4.11 分別為 n-GaAs，以能量 $\hbar\omega = 1.59 \text{ eV}$ 的 σ^+ 光，在不同激發密度下，自旋極化率的擬合曲線，而圖 4.12 是時間為 1ps 時 n-GaAs 的自旋極化率數值。

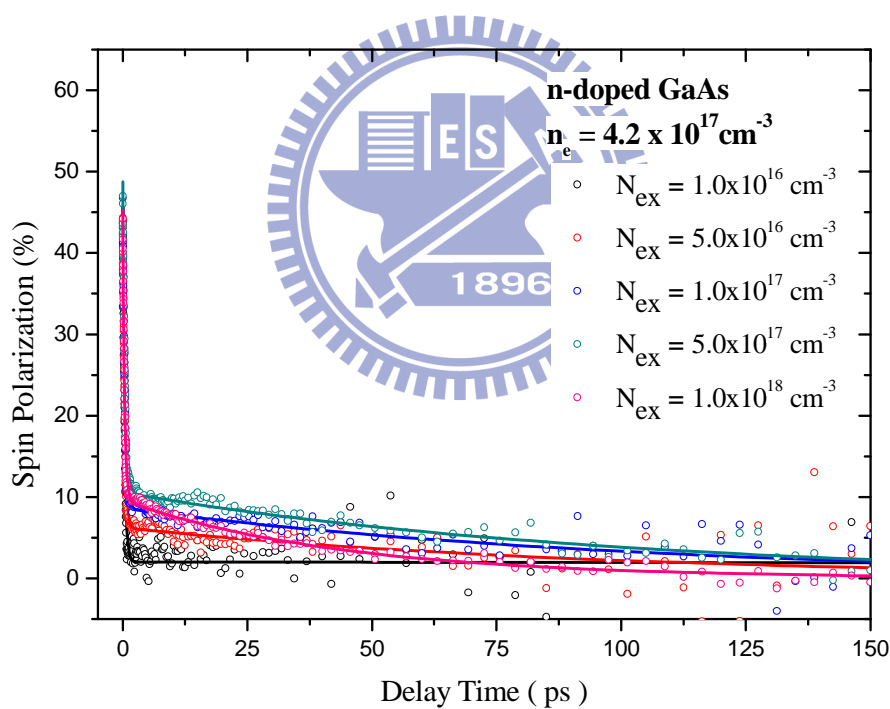


圖 4.10 $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的 n-GaAs 之自旋極化率的擬合曲線

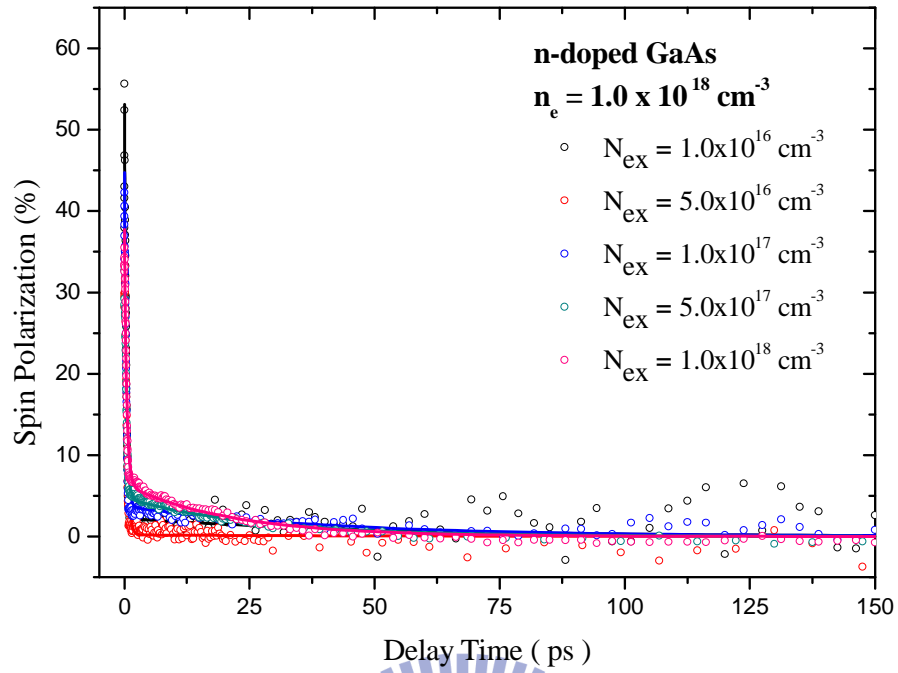


圖 4.11 $n_e = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 n-GaAs 之自旋極化率擬合曲線

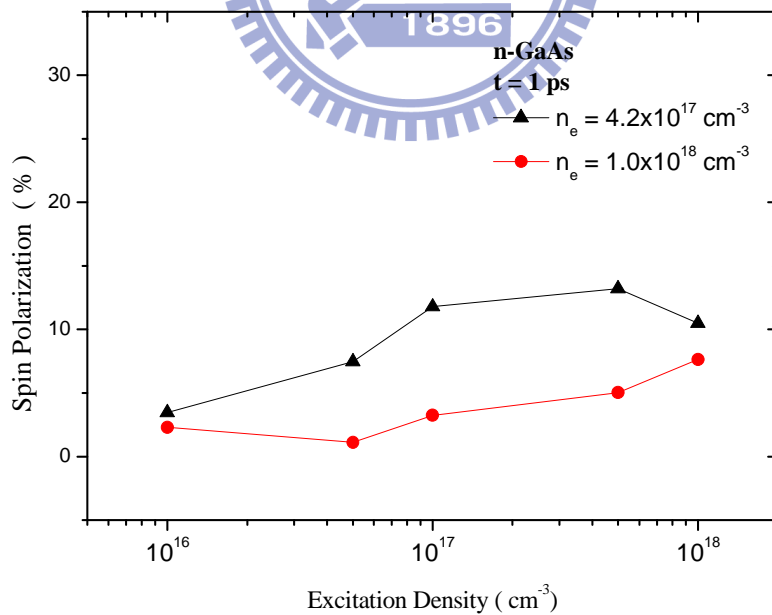


圖 4.12 時間為 1ps 時 n-GaAs 的自旋極化率數值

整體來說，對不同電子濃度的 n-GaAs 自旋極化率 $P(t = 1\text{ps})$ 隨著激發強度的增加均呈現遞增的趨勢，且 $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的自旋極化率會比 $n_e = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 大。利用簡單的運算過程來驗證，如圖 4.13 所示，對 n 型 GaAs 半導體而言，令摻雜電子濃度 $n_e = n$ ，選定角動量量子化 \hat{z} 軸垂直於晶體表面，能量 $\hbar\omega = 1.59\text{eV}$ 介於能隙 $E_g = 1.42\text{eV}$ 與 $E_g + \Delta_{\text{SO}} = 1.76\text{eV}$ 的 σ^+ 入射光(z 方向)激發，此時價帶的電子 $|J = 3/2; m_j = -3/2\rangle$ 和 $|J = 3/2; m_j = -1/2\rangle$ 分別躍遷至 $|J = 1/2; m_j = -1/2\rangle$ 和 $|J = 1/2; m_j = 1/2\rangle$ 。由費米黃金定律 (Fermi golden rule) 計算導帶產生自旋向上與自旋向下的電子的轉移機率(transition probability) 為

$$\frac{n_{\downarrow}}{n_{\uparrow}} = \frac{|\langle c' | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{R} | v' \rangle|^2}{|\langle c | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{R} | v \rangle|^2} = \frac{|\langle 1/2; -1/2 | Y_{11} | 3/2; -3/2 \rangle|^2}{|\langle 1/2; 1/2 | Y_{11} | 3/2; -1/2 \rangle|^2} = 3, \quad (4.3)$$

$$N_{\text{ex}} = n_{\uparrow} + n_{\downarrow} = 4n_{\uparrow}, \quad (4.4)$$

當電子電洞復合時，如圖 4.14，電洞受到自旋軌道偶合影響，自旋極化迅速衰退，電洞的鬆弛時間只有 110 fs，因此在熱平衡時間 τ 時，電洞不具有自旋極化。對 n-GaAs 來說考慮，摻雜濃度 $n_e = n$ ，導電帶

$|J = 3/2; m_j = -1/2\rangle$ 及 $|J = 3/2; m_j = 1/2\rangle$ 平均佔據 $\frac{n}{2}$ 個電子，則螢光的圓偏極化率(the degree of circular polarization)為

$$P_{\text{circular}} = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = \frac{(\frac{1}{4}n_{\uparrow} + \frac{3}{4}n_{\downarrow} + n/2) - (\frac{3}{4}n_{\uparrow} + \frac{1}{4}n_{\downarrow} + n/2)}{(\frac{1}{4}n_{\uparrow} + \frac{3}{4}n_{\downarrow} + n/2) + (\frac{3}{4}n_{\uparrow} + \frac{1}{4}n_{\downarrow} + n/2)} = \frac{1}{4} \left(\frac{1}{1 + (n_e / 4n_{\uparrow})} \right), \quad (4.5)$$

且 $N_{\text{ex}} = n_{\uparrow} + n_{\downarrow} = 4n_{\uparrow}$ 和 $n_e = n$

所以

$$P_{\text{circular}} = \frac{1}{4} \left(\frac{1}{1 + (n_e / N_{\text{ex}})} \right) \leq 25\%, \quad (4.6)$$

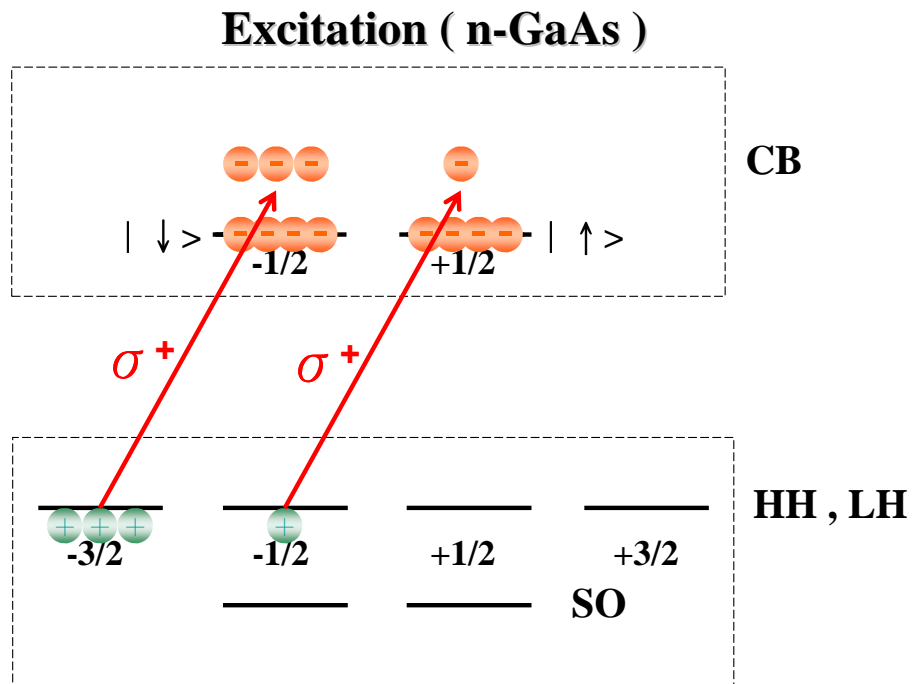


圖 4.13 n-GaAs 以 σ^+ 光激發過程

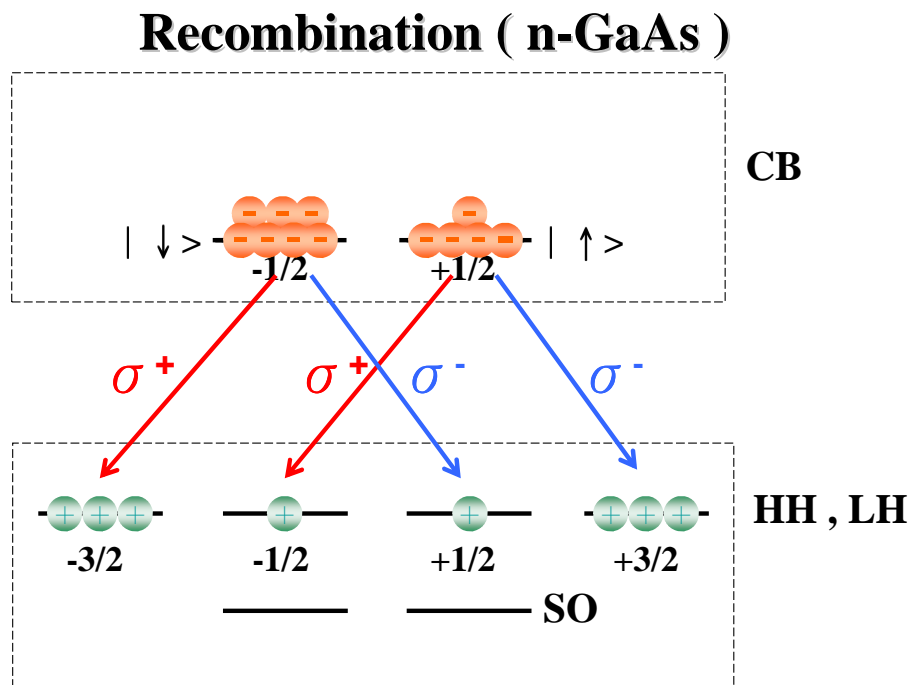


圖 4.14 n-GaAs 輻射複合過程

可以看出 P 值決定於 n_e / N_{ex} ， n_e 值越大或 N_{ex} 越小都會降低 P 值，可以驗證圖 4.12 的結果，當摻雜電子濃度固定時， $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 及 $n_e = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs，隨著 N_{ex} 增加 P 值都呈現遞增的趨勢，除了 $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 在激發密度 N_{ex} 增加至 $1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ，P 值反而下降，是由於當主要是 $N_{ex} = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 此時系統已達簡併，受到非均勻擴展 (inhomogeneous broadening) $\langle |\Omega_k|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle \propto N_{ex}^2$ 的影響， $|\Omega_k|^2$ 隨著激發密度的增加而提升，自旋電子彼此以不同 larmor 頻率進動，自旋間的相位相互干擾，造成 P 值的衰減[4.3]。

4-1-3-2 變激發密度及不同摻雜濃度之自旋鬆弛時間

圖 4.15 為摻雜濃度 $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 自旋鬆弛時間隨激發密度的變化， τ_1 主要是自旋電洞鬆弛所控制隨著激發密度的增加，變化幅度不大，大約為 0.3 ps。在激發強度 $N_e = 1.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ，極化率 P 在 1 ps 只剩大約為 5.25%，容易因為雜訊的影響，造成 P 值的誤判，導致自旋鬆弛時間 τ_2 的擬和值有很大的誤差，故不採計。而 τ_2 隨著激發強度的增加，先上升然後下降。當激發密度 N_{ex} 由 $1.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 增加至 $5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 時，此時位於強動量散射場 ($\tau_p \Omega_{av} \ll 1$)，即動量散射時間 τ_p 短於自旋電子轉動一圈的平均時間大小 τ_s ，隨著激發密度增加，越強的動量散射抑制自旋鬆弛能力越好，使得自旋鬆弛時間更長。但當激發密度 N_{ex} 由 $5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 增加至 $1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 時，自旋鬆弛時間反而加速減少，由 105 ps 減少至 45 ps，主要是受到非均勻擴展項： $\langle |\Omega_k|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle \propto N_{ex}^2$ 的影響，因此隨著激發密度 N_{ex} 的增加，非均勻擴展效應越明顯，導致自旋快速的鬆弛[4.3]。

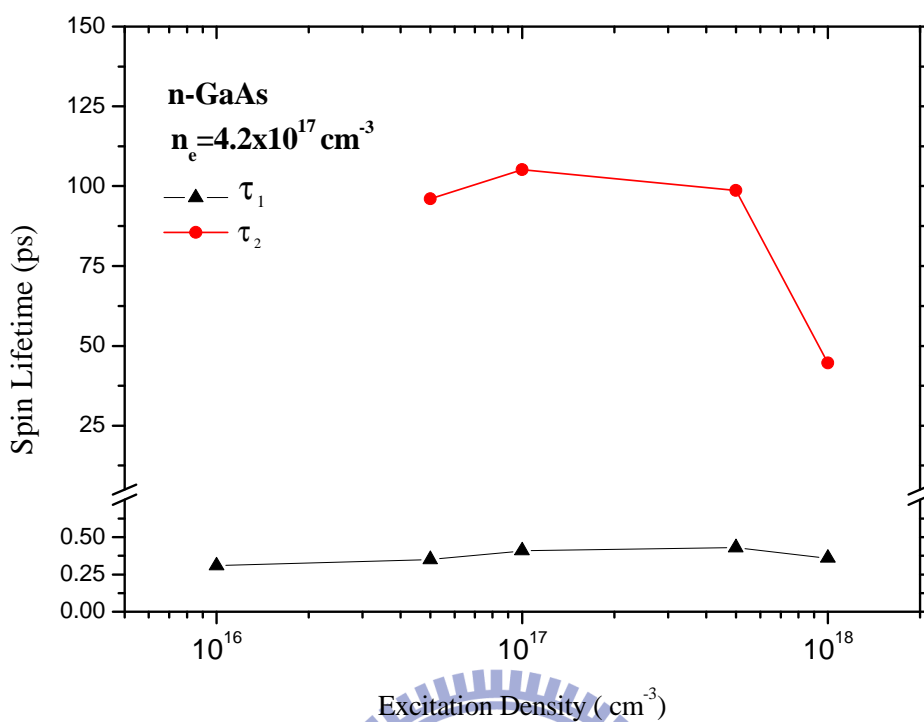


圖 4.15 $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 的自旋鬆弛時間

對不同摻雜電子濃度的 GaAs 其自旋鬆弛時間 τ_2 ，如圖 4.16，隨著摻雜濃度增加，自旋鬆弛時間先上升後下降，呈現非單調的變化，考慮由 Dresselhaus 自旋軌道耦合導致的非均勻擴展 $\langle |\Omega_k|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle \propto \langle \epsilon_k^3 \rangle$ ，將自旋鬆弛時間修正為[4.8]

$$\tau_2^{-1} \cong \langle |\Omega(k)|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle \tau_p, \quad (4.7)$$

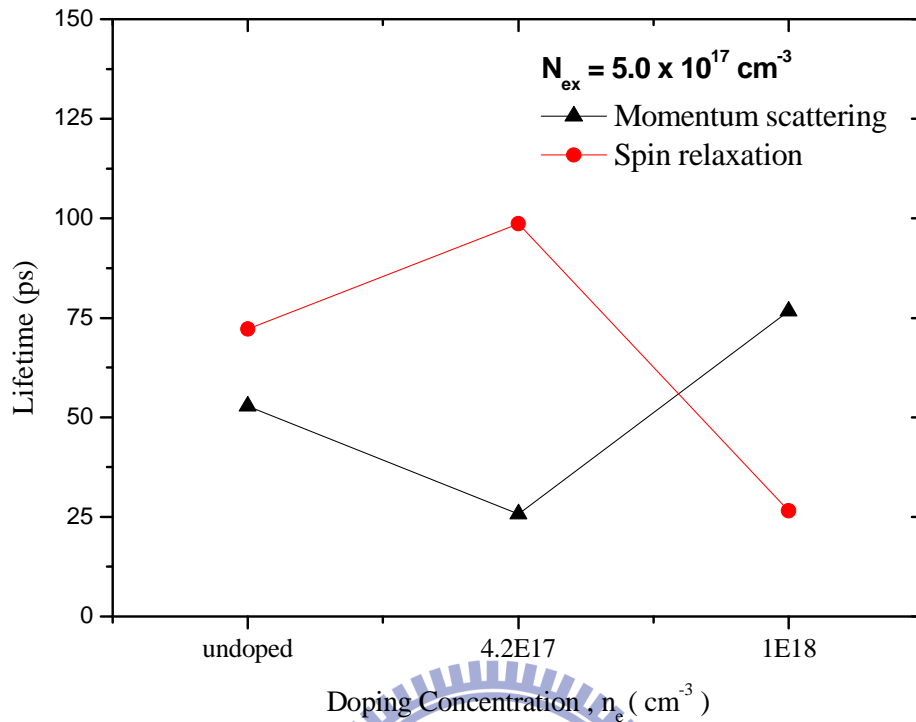


圖 4.16 不同摻雜濃度的 GaAs 的自旋鬆弛時間

先探討動量散射時間的部份，可以看出隨著摻雜濃度增加， τ_p 先下降後上升。相對於未摻雜 GaAs 來說，摻雜電子濃度 $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 可以提升碰撞速率，減少動量散射時間。但如果摻雜更高的濃度 n_e 達 $1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 時，動量散射時間反而上升。這是因為 GaAs 在室溫下，當電子摻雜濃度 $n_e = 5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 時，即成為簡併半導體，此時摻雜更多的電子，反而會抑制動量散射。如圖 4.17 所示，在高簡併時的散射過程，低能階 E1 被佔據的機率 $f_{\text{FD}}(\epsilon)$ 大於 $1/2$ ，由於 Pauli 不相容原理，電子傾向由低能階 E1 往高能階 E2 散射，因此背向散射 (backward scattering) 會成為主宰而不是正向散射 (forward scattering)。將總散射速率定義為 [4.6]

$$W = W_0 \times f_i \times f_f, \quad (4.8)$$

其中 W_0 為非簡併半導體的散射速率為, f_i 是初狀態被佔據的比例 ($>1/2$), f_f 是末狀態未被佔據的比例 ($<1/2$), 當摻雜更多的電子, 使得 f_i 比例上升, 但 f_f 相較於 f_i 是更高比例的下降, 末狀態的有效密度減少, 導致散射速率 W 變慢。因此當 n_e 由 $4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 增加至 $1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 時, 散射速率 W 會變小, 使得動量散射時間由 25.78 ps 遞增至 76.70 ps。

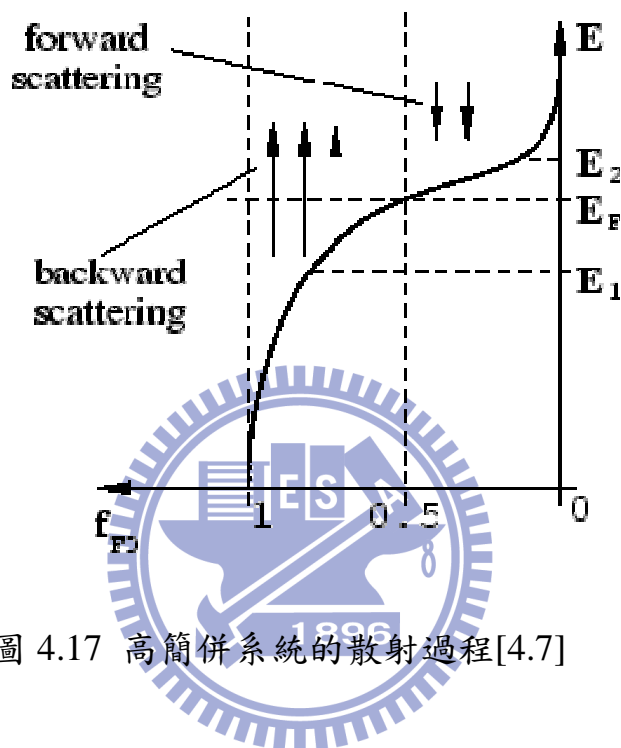


圖 4.17 高簡併系統的散射過程[4.7]

同動量散射的討論, 根據半導體是否簡併來探討 Dresselhaus 自旋軌道耦合導致的非均勻擴展項

$$\langle |\Omega_k|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle \propto \langle \epsilon_k^3 \rangle \propto \begin{cases} n_e^0, & n_e < 5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3} \\ n_e^2, & n_e \geq 5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3} \end{cases}, \quad (4.9)$$

當系統處於未簡併時 ($n_e < 5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$), $\langle |\Omega_k|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle$ 不隨 n_e 的變化而改變, 因此未摻雜 GaAs 與 $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 的非均勻擴展效應是一樣的, 但當系統達簡併 ($n_e \geq 5.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) 時, $\langle |\Omega_k|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle$ 隨著電子摻雜濃度 n_e 的平方項上升, 因此 $n_e = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 具有最大的非均勻擴展效應。

整體來說，動量散射時間： $n_e = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 最大，本質 GaAs 次之， $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 最小；而非均勻擴展項 $\langle |\Omega_k|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle$ ： $n_e = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 最大，本質和 $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 最小。因此自旋鬆弛時間 $T_2 \cong \left[\langle |\Omega(k)|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle \tau_p \right]^{-1}$ ： $n_e = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 最大，本質 GaAs 次之， $n_e = 4.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 的 GaAs 最小，與實驗結果相當吻合。

4-1-3-3 自旋電洞鬆弛時間

當電子摻雜濃度 n_e 遠小於光激發密度 N_{ex} 時，晶體內的自旋電子的極化值 $P_n(t=0) = \frac{n_\uparrow - n_\downarrow}{n_\uparrow + n_\downarrow} \approx 0$ ，幾乎可以排除自旋電子的影響，自旋鬆弛機制將由電洞所主宰。

圖 4.18 為 $n_e = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 的 n-GaAs 的時間解析光譜，以能量 $\hbar\omega = 1.59 \text{ eV}$ ，激發密度 $N_{ex} = 3.0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 的 σ^+ 圓偏振光，可以發現 I^+ 及 I^- 在不到 1ps 就已經重合，自旋極化率趨近於零，導致自旋極化率的時間解析光譜由兩段變成一段，表示電子的自旋鬆弛機制已經消失。

針對圖 4.18 的結果，利用 $P = A_1 e^{-t/\tau_1}$ 來擬合 (fitting)，如圖 4.19，則電洞自旋鬆弛時間 τ_1 約為 0.29 ps，遠比電子自旋鬆弛時間短，這是由於輕電洞與重電洞強烈地耦合，導致自旋電洞翻轉，因此電洞非常快速地鬆弛[4.9-4.10]。

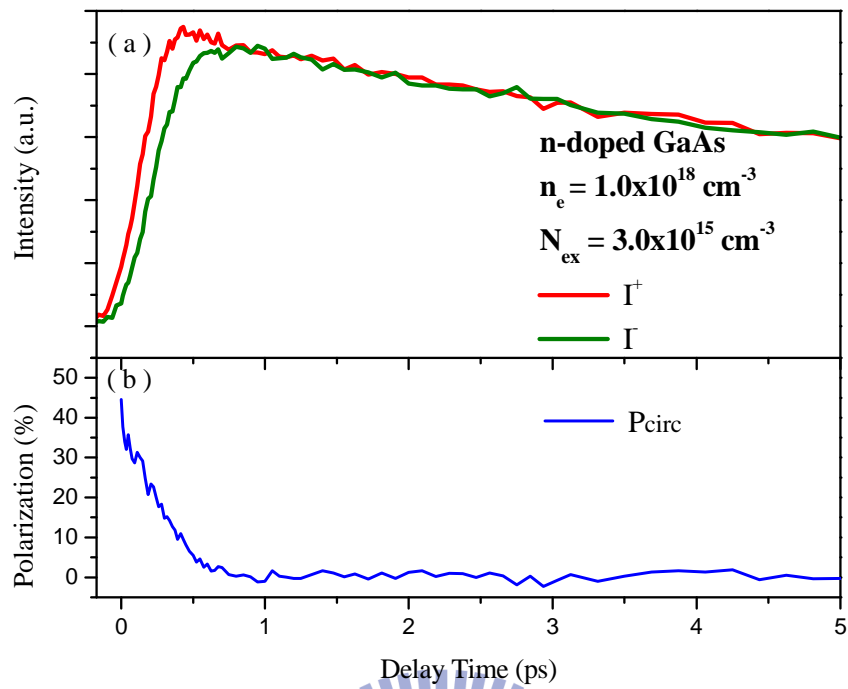


圖 4.18 (a) n-GaAs 時間解析光譜 (b)自旋鬆弛時間解析光譜

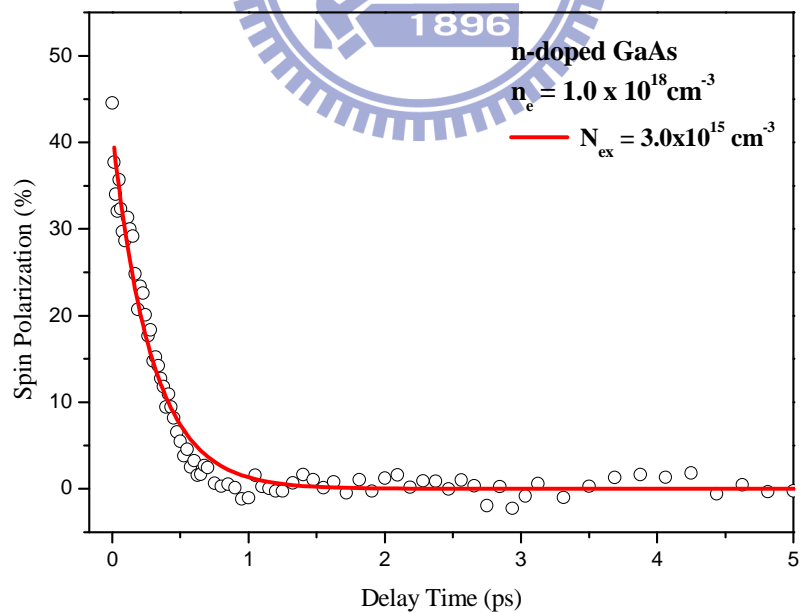


圖 4.19 n-GaAs 的自旋極化率擬合曲線

4-2 Modulation-doped InAs/GaAs QRs 的自旋動力學

圖 4.20-4.23 分別是是量子環中 barrier、WL、ES、GS 的自旋極化的擬合曲線，以能量 $\hbar\omega=1.59\text{eV}$ 、激發密度 $N_{\text{ex}}=800\text{W/cm}^{-2}$ 的 σ^+ 光激發。如圖 4.20 所式，先觀察 0 到 1 ps 的自旋電洞鬆弛過程，本質 QRs (n-QRs) 皆有很長的明顯的快速鬆弛曲線，自旋極化率分別從約 48% (42%) 下降至約 20% (18%)，呈現與本質 GaAs 類似的自旋鬆弛過程，這是因為摻雜在量子環 barrier 上的載子，會擴散至較低能階的量子環內，因此摻雜的 barrier 實質上還是本質半導體，但 p-QRs 的快速鬆弛曲線就沒有那麼明顯，自旋極化率由約 32% 下降至約 18%，這是由於重摻雜的電洞的緣故，乃有部分的電洞沒有擴散至 QRs 內，因而呈現介於本質 GaAs 與 p-GaAs ($n_{\text{h}}=5.8\times 10^{18}\text{cm}^{-3}$) 間的電洞自旋鬆弛現象。

再來觀察長程的部份，本質 QRs、n-QRs 和 p-QRs 的 barrier 自旋鬆弛時間分別為 38.29 ps、50.50 ps、41.22 ps，n-QRs 的自旋鬆弛時間明顯較本質與 p-QRs 長，這是由於 n-QRs 有大量的內建電子於 QRs 內，因此在光激發後的自旋電子不易鬆弛至 QRs，只好停留在 barrier 行輻射複合發光。

由圖 4.20、4.21 可以看出連續態 barrier 與 WL 除了在 1ps 前電洞所造成的快速鬆弛，之後的自旋電子鬆弛乃維持了幾十 ps 的時間，但在量子環內的分立能階 ES 與 GS 卻只剩下幾百 fs，先探討自旋電洞鬆弛的效應，ES 及 GS 的自旋電洞是來自訊號是自於 barrier 與 WL，而 barrier 與 WL 的自旋電洞在 1ps 前使得整體的自旋極化從約 30% ~ 50% 下降至約 20% (理論上，當自旋電洞鬆弛完畢後，自旋極化率約為 25%)，因此在 1ps 之後

的自旋鬆弛將由自旋電子所主宰。從圖可以看到，QRs 的 ES 在時間為零時，自旋極化值約為 20-30%，相當接近 20%，此時自旋電洞幾乎已鬆弛完畢，初步排除為電洞所造成的效應。當經過 1ps 時，QRs 的自旋極化已快速下降到 10% 以下，因此更加確定此快速鬆弛機制由自旋電子所主宰。然而量子環基態與激發態的自旋鬆弛時間不到 1ps，這是由於載子激發在量子環 barrier 上，載子在抵達激發態及基態前必須經由很多載子冷卻過程（如載子-載子散射、載子-聲子散射、次能帶內散射），導致自旋快速地鬆弛。我們應該將載子直接激發在量子環內，再一次檢驗量子環的自旋動力學。

如圖 4.24 是圖 4.20-4.23 的自旋極化鬆弛時間的擬合結果，不同摻雜的量子環在 GS 的自旋電子鬆弛時間表現，p-QRs 最長（約 0.88 ps），本質 QRs 次之（約 0.63 ps），n-QRs 最短（約 0.48 ps）。對重摻雜 p-QRs 來說，相較於本質 QRs，內建的大量電洞，可以藉由載子-載子散射克服聲子瓶頸，自旋電子比較容易被 QRs 捕捉，因此 p-QRs 的自旋鬆弛時間比本質 QRs 長；而對重摻雜 n-QRs 來說，內建的大量電子，雖然同樣可以克服聲子瓶頸，但內建的電子都不帶有任何自旋訊息，會稀釋由光激發後產生的自旋電子，因此 n-QRs 的自旋訊號比本質 QRs 短。由不同摻雜的 QRs 在自旋極化率表現也呈現類似的結果，由圖所示，p-QRs 從 barrier 至 GS 在初始自旋相位保持相當一致，而 n-QRs 與本質 QRs 都呈現衰減的狀態，且 n-QRs 衰減較本質快。

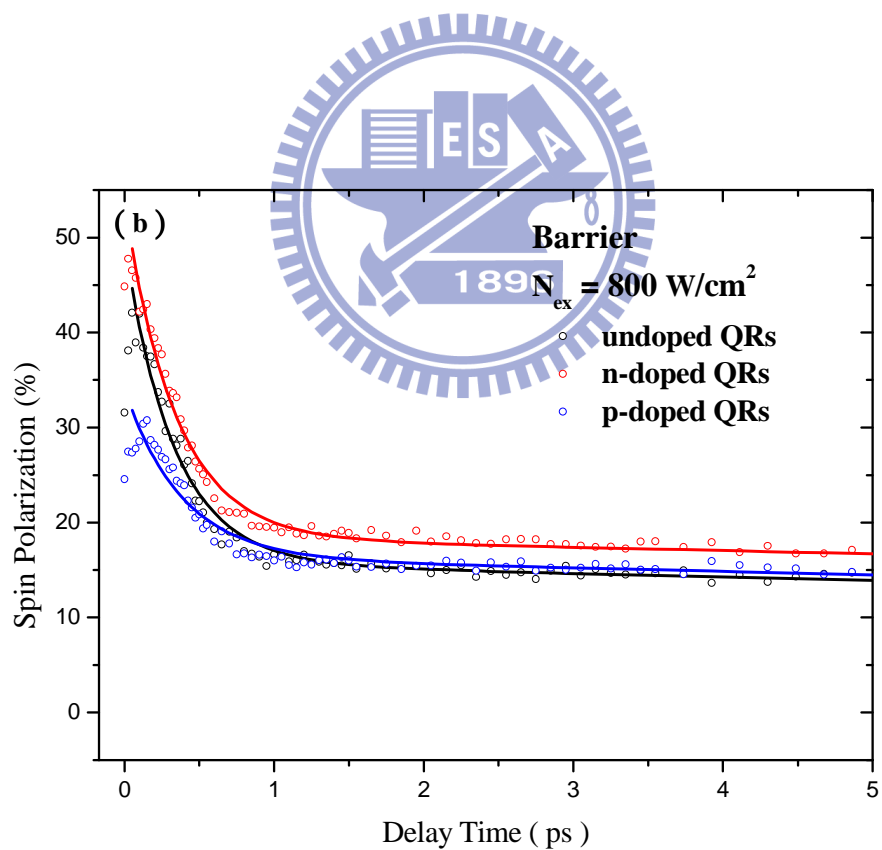
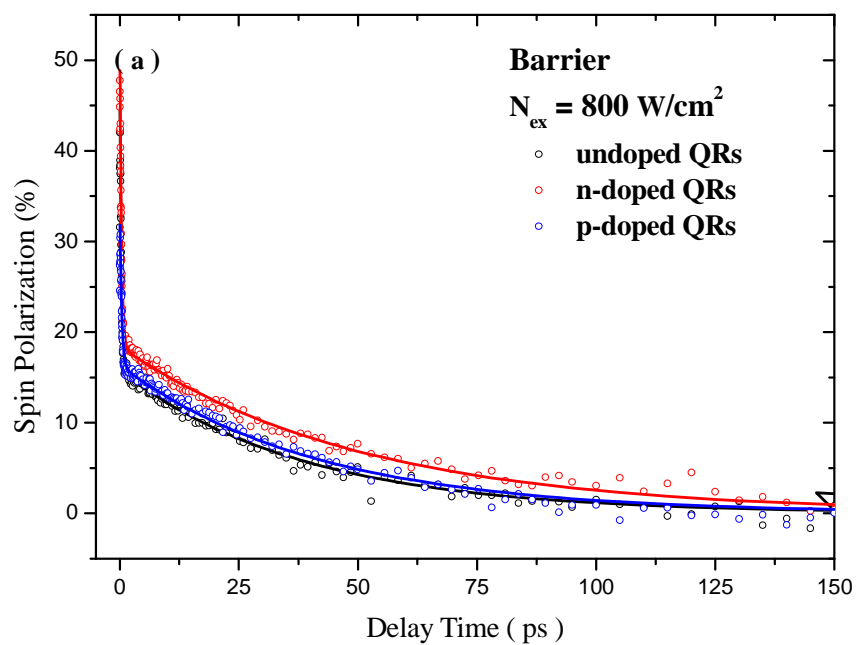


圖 4.20 barrier 的自旋鬆弛解析光譜(a)長程(150 ps) (b)短程(5 ps)

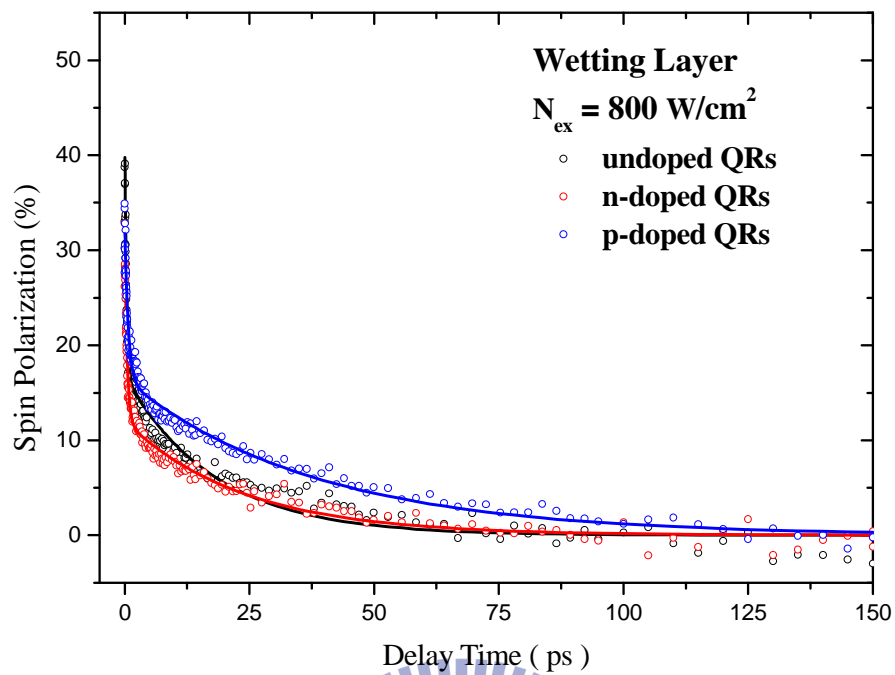


圖 4.21 量子環中 WL 之自旋鬆弛時間解析光譜

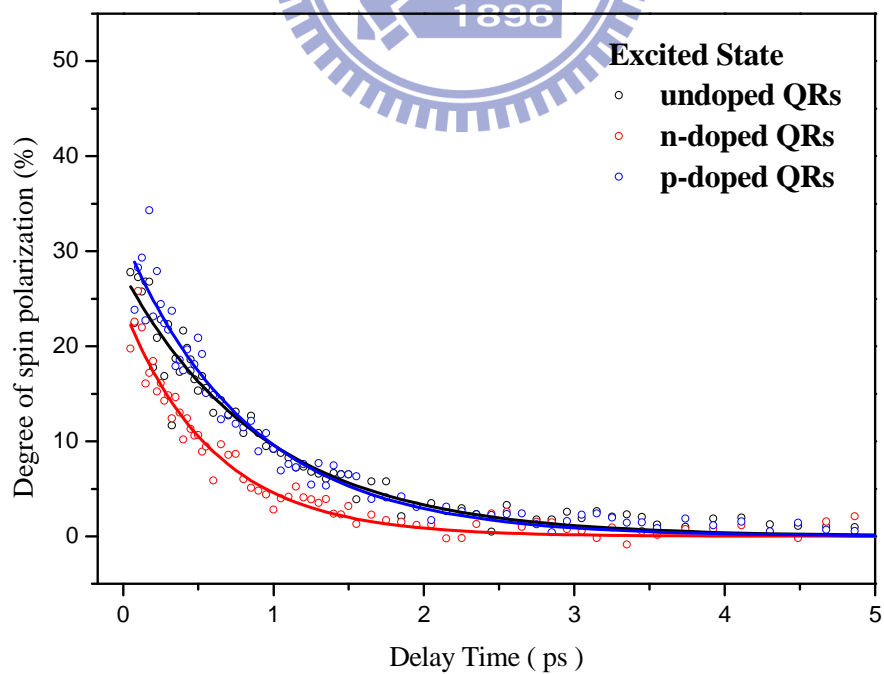


圖 4.22 量子環中激發態之自旋鬆弛時間解析光譜

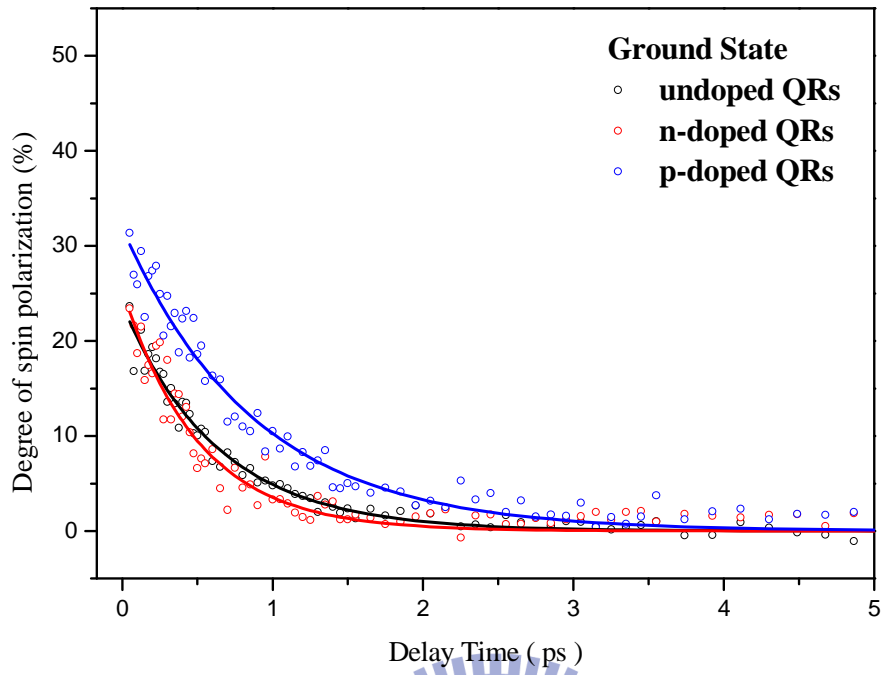


圖 4.23 量子環中基態之自旋鬆弛時間解析光譜

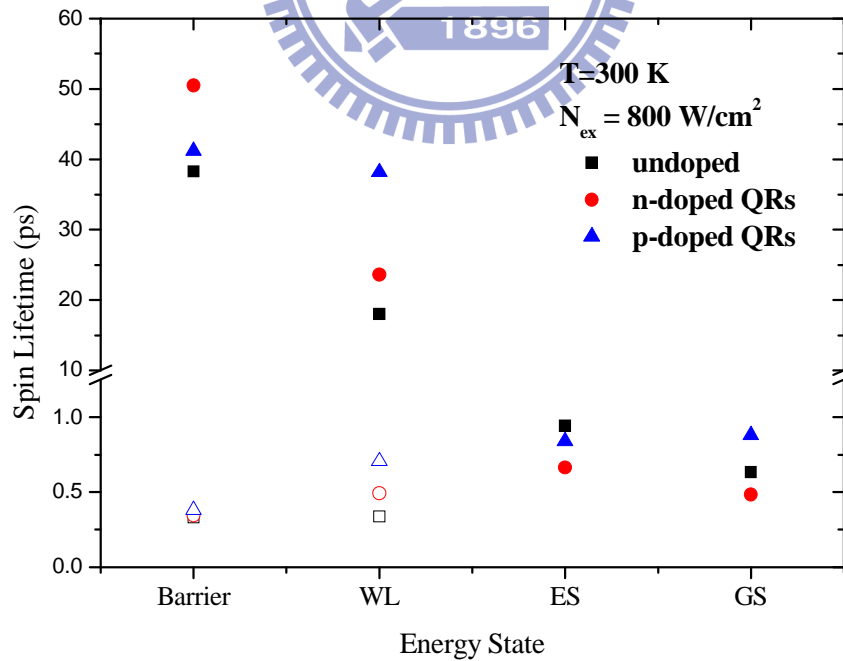


圖 4.24 量子環中不同能帶的自旋鬆弛時間

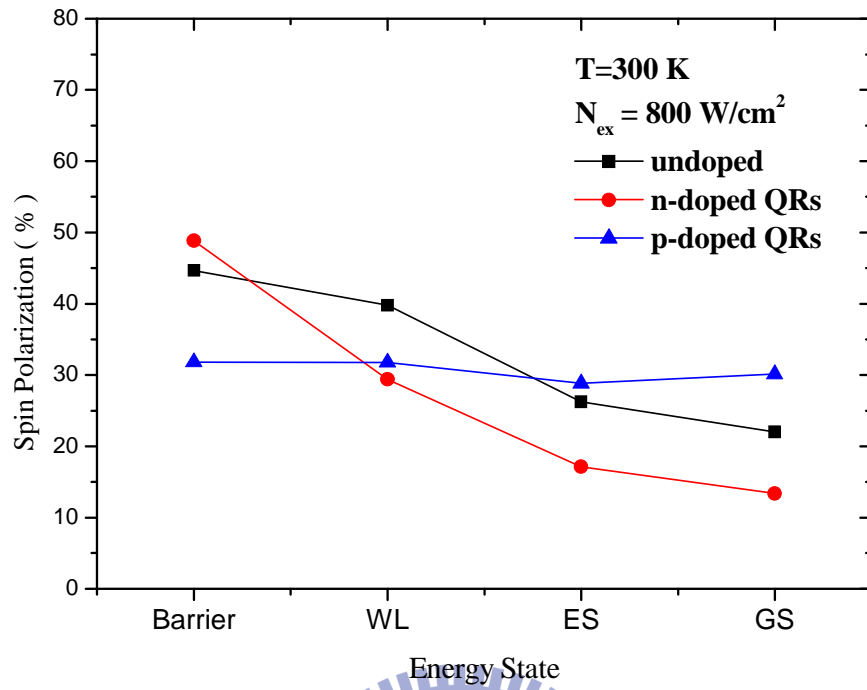


圖 4.25 量子環中不同能帶的自旋極化率



4-3 參考文獻

- [4.1] M. D'yakonov and V. Perel', Sov. Phys. JETP Lett. 13, 144 (1971).
- [4.2] S. Oertel, J. Hübner and M. Oestreich, Appl. Phys. Lett. 93, 132112 (2008).
- [4.3] J H Jiang and M W Wu , J. Phys. D, Appl. Phys. 42 238001(2009).
- [4.4] G. L. Bir, A. G. Aronov and G. E. Pikus, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 69, 1382 (1975).
- [4.5] M.W. Wu, J.H. Jiang and M.Q. Weng, Physics Reports. 493, 61-236(2010)
- [4.6] Peter Ney Saeta, Optical Studies of Ultrafast Carrier Dynamics in Semiconducting Materials,(1991).
- [4.7] Sergey Smirnov, Physical Modeling of Electron Transport in Strained Silicon and Silicon-Germanium (2003).
- [4.8] J. H. Jiang and M. W. Wu, Phys. Rev. B. 79, 125206 (2009).
- [4.9] D. Culcer and R. Winkler, Phys. Rev. B. 76, 195204 (2007).
- [4.10] D.J. Hilton and C.L. Tang, Phys. Rev. Lett. 89, 146601 (2002).
- [4.11] Jiang Hong-Liang, Zhang Rong-Jun, Zhou Hong-Ming , Yao Duan-Zheng, Xiong Gui-Guang, Acta. Phys. Sin. 60,1-017204 (2001).

第五章 結論

我們利用自旋極化鬆弛時間解析系統來探討三五族半導體的自旋動態行為，發現本質及 n 型 GaAs 塊材其自旋鬆弛呈現雙指數衰退，其中第一段的快速鬆弛發生在不到 1 皮秒的時間，而第二段的緩慢鬆弛從一皮秒後持續了幾十皮秒；但 p 型 GaAs 塊材卻不見在一皮秒前的快速鬆弛，呈現單指數緩慢衰退，表示 p 型 GaAs 內的摻雜電洞使得快速鬆弛曲線消失，因此可以推測第一段的快速鬆弛是由電洞所造成，第二段是自旋電子的過程。而電洞自旋鬆弛時間大約只有三百飛秒，這是由於輕電洞與重電洞強烈地耦合，導致自旋電洞快速翻轉，因此自旋電洞迅速地鬆弛[4.9-4.10]。而 GaAs 塊材在室溫下，DP 機制的影響性最大，隨著光激發密度增加時，越強地動量散射抑制自旋鬆弛能力越好，使得自旋鬆弛時間更長，但達到一定的激發強度時，受到非均勻擴展 (inhomogeneous broadening) 的效應影響，反而會加速自旋鬆弛[4.3][4.5][4.8]。

最後我們探討量子環的自旋動態特性，由於量子環具三維的量子侷限，預期可以比塊材維持更長的自旋相位時間。然而量子環基態與激發態的自旋鬆弛時間不到 1ps，這是由於載子激發在量子環 barrier 上，載子在抵達激發態及基態前必須經由很多冷卻過程（如載子-載子散射、載子-聲子散射、次能帶內散射），導致自旋快速地鬆弛。我們應該將載子直接激發在量子環內，再一次檢驗量子環的自旋動力學。