

國立交通大學

應用化學系分子科學碩士班

碩士論文

砷化鎵(001)量子井的自旋動力學

Spin Dynamics in (001) GaAs Quantum Well

研究生：林志昇

指導教授：孫建文 博士

中華民國一百零一年九月

砷化鎵(001)量子井的自旋動力學

Spin Dynamics in (001) GaAs Quantum Well

研究生：林志昇 Student: Chih-Sheng Lin

指導教授：孫建文 博士 Advisor: Dr. Kien-Wen Sun



A Thesis

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

College of Science

National Chiao Tung University

In partial Fulfillment of the Requirements

For the Degree of

Master

In

Applied Chemistry

September 2012

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國一百零一年九月

摘要

自旋動力學為一個由多學科交叉而形成的新興領域，以自旋自由度為研究對象並發展新型自旋電子元件為目標，在近十年間取得令人矚目的進展。在實現自旋電子元件中有兩個非常重要的問題：如何延長自旋鬆弛時間以及如何有效地控制自旋。

因此我們將三維空間自由運動的粒子束縛在一個平面區域，如量子井，由於砷化鎵和鋁砷化鎵存在的晶格不匹配，晶格對稱性遭到破壞，價帶能階產生了位移和分裂出重電洞和輕電洞兩個不同的能階，因為重電洞與輕電洞的能階分裂，極化率理論上可以達到接近 100%，

這篇論文將利用自旋鬆弛時間解析光譜來探討二維砷化鎵/鋁砷化鎵量子井與三維砷化鎵的自旋特性差異，並根據本質、n 型和 p 型砷化鎵量子井及塊材，來探討室溫下三大鬆弛機制：Elliott-Yafet, D'yakonov-Perel 和 Bir-Aronov-Pikus 的相對重要性。

我們發現到相較於三維塊材，量子井中受到自旋軌道耦合的影響更為明顯，在低激發強度下的本質量子井中，可觀察到自旋鬆弛行為由電洞所主宰，而(001)量子井中，因為自旋軌道耦合的影響，電子和電洞自旋鬆弛時間都比三維塊材來得短，最後，量子井中電洞自旋鬆弛行為較為明顯，可藉由控制電洞自旋鬆弛來達成高極化率，低摻雜 N 型(001)GaAs 以較高的光激發密度激發，極化率可接近 80%。

ABSTRACT

Spin dynamics in semiconductors have gained much interest in the past years due to the emerging field of semiconductor spintronics. In this thesis, we use a time-resolved photoluminescence polarization spectroscopy system to investigate electron and hole spin dynamics in GaAs/AlGaAs quantum wells grown on (001) wafers and compare the results with the bulk GaAs.

We find that the DP mechanism plays an important role for spin relaxation in both GaAs quantum wells and in the bulk. The spin relaxation time of the electrons is only on the order of a few tens of ps. Due to the strong spin-orbit coupling effect the electron and hole spin relaxation times are much faster in GaAs quantum wells in comparing to the bulk.

The spin relaxation is dominated by the holes in the undoped GaAs quantum wells at low excitation densities. It indicates that the spin-orbit coupling is stronger in quantum wells than in the bulk. In addition, the hole spin relaxation time is also determined with a rate of less than 300 fs.

Due to the splitting of the heavy-hole and light-hole bands, as well as the much shorter hole spin relaxation time than that of the electrons, we are able to generate close to 80% spin polarization in the lightly n-doped quantum wells at high excitation densities.

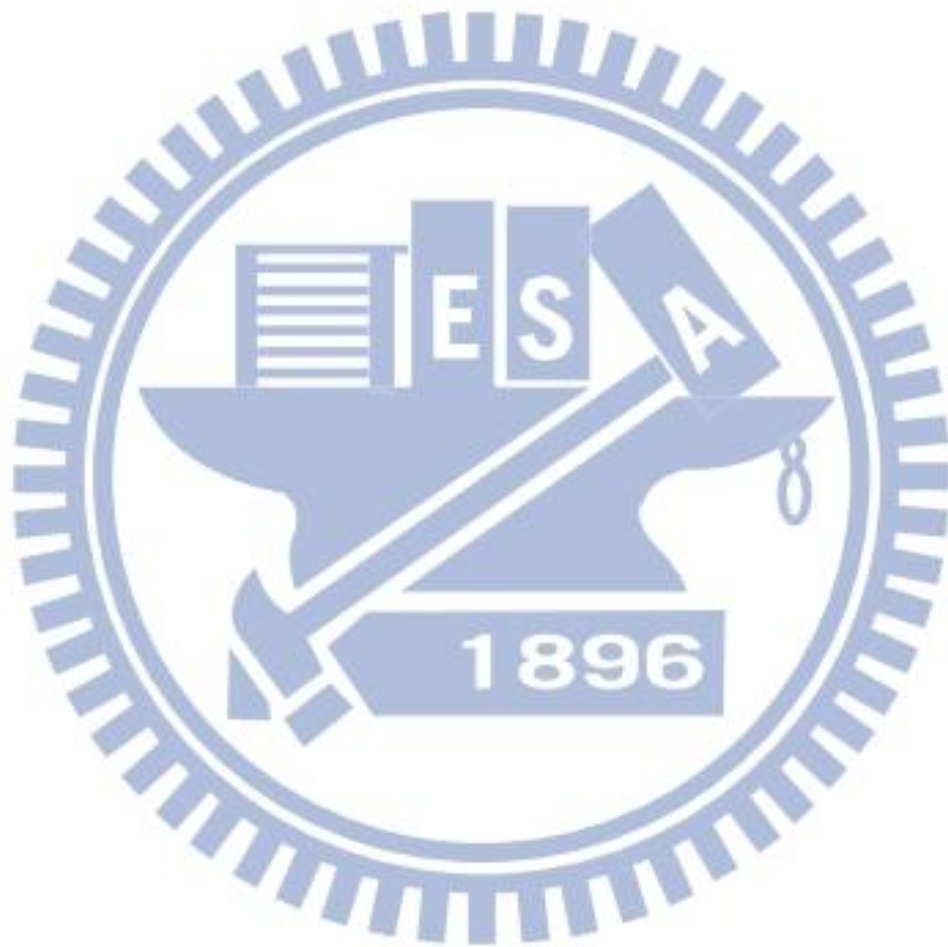
致謝

不知不覺中研究所的求學生涯轉眼間就過去，在不見天日的地下室中渡過兩年，要感謝師長們的指導、教誨，還有朋友們的陪伴與幫助，使我得以順利的完成學業。

首先誠摯的感謝指導教授孫建文博士，感謝老師悉心的教導使我得以一窺領域的深奧，不時的討論並指點我正確的方向，使我在這些年中獲益匪淺，並使本論文能夠順利地完成。另外還要感謝兩位口試委員沈志霖教授與吳仲卿教授，在口試的過程中指正與建議，使得本論文能夠更完整而嚴謹。

感謝新欣學長及建宏學長在超快時間解析光譜的傳承與教導，並提供許多寶貴的建議，讓實驗得以順利進行，祝福新欣學長工作和建宏學長研究上順利。謝謝實驗室的昱麟、昭凱、老科和政元學長們在研究中的指點和幫助，並讓我在這陌生的環境底下可以快速的融入實驗。再來是一起打拚的好夥伴們，允中、學亨和俊曄，實驗室裡共同的生活點滴，學術上的討論、言不及義的閒聊以及趕論文的革命情感，恭喜我們順利走過這兩年，並感謝允中最後這一個月搬到 B19 的陪伴，以及你每天照三餐播放的 gangnam style。最後趕謝學弟們：志恆、銘弘、沛叡在口試上幫忙，你們的幫忙及搞笑我銘感在心。雷射的部分就交給學弟妹們照顧了。

最後，謹以此文獻給我摯愛的家人，爸爸、媽媽、哥哥以及許多關心我的親戚，由衷的感謝你們這些年來在背後默默的支持。

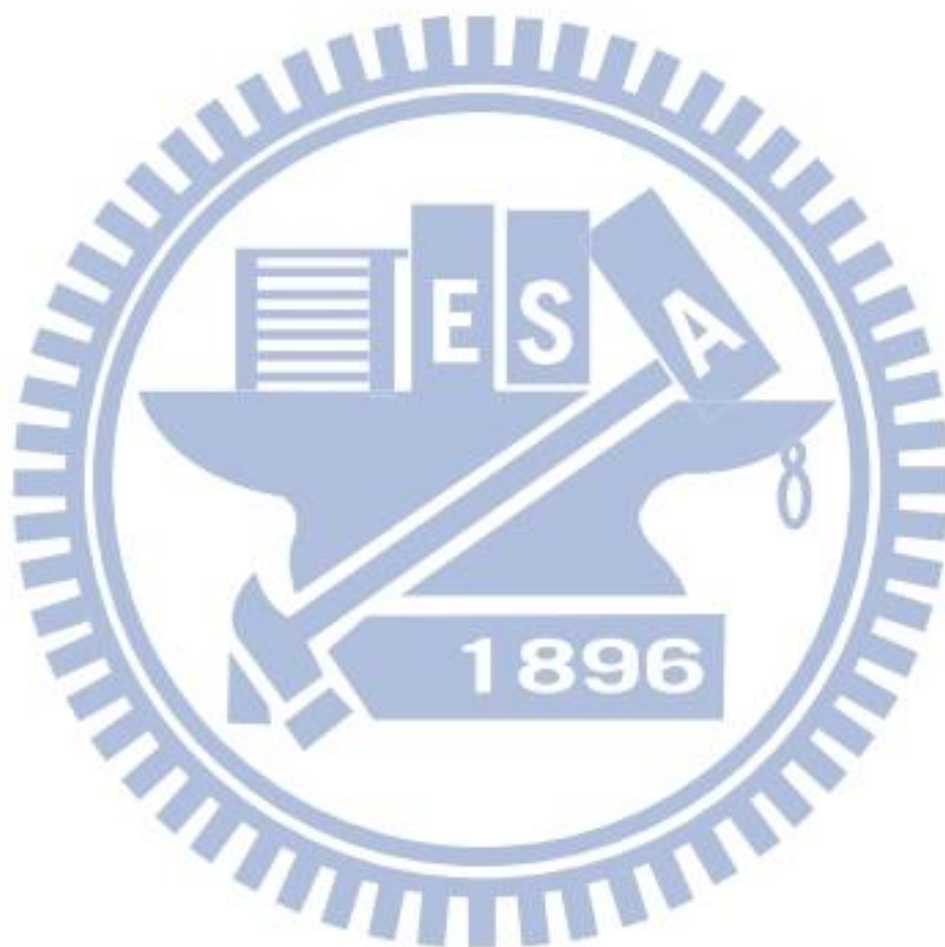


林志昇 2012年9月

目錄

中文摘要.....	I
英文摘要.....	II
致謝.....	III
目錄.....	V
圖目錄.....	VII
表目錄.....	IX
第一章 緒論.....	1
1-1 前言.....	1
1-2 文獻回顧.....	2
1-3 研究動機.....	5
1-4 參考文獻.....	6
第二章 自旋軌道耦合與自旋鬆弛機制.....	7
2-1 自旋極化.....	7
2-2 自旋軌道耦合(spin-orbit coupling, SOC).....	14
2-3 自旋鬆弛.....	17
2-3-1 Bloch-Torrey 方程式.....	17
2-3-2 自旋鬆弛機制.....	20
2-4 參考文獻.....	30
第三章 樣品介紹與實驗設備.....	32
3-1 樣品介紹.....	32
3-2 實驗設備.....	37
3-2-1 Up-conversion 系統架設.....	37
3-3 自旋鬆弛時間解析系統架設.....	52
3-3-1 偏極化的產生.....	52
3-3-2 自旋鬆弛時間解析系統架設.....	55
3-4 參考文獻.....	56
第四章 實驗結果與討論.....	57
4-1 Undoped GaAs 的自旋動力學.....	57
4-1-1 不同激發密度之自旋極化率.....	58
4-1-2 不同激發密度之自旋鬆弛時間.....	62
4-2 N 型 GaAs 的自旋動力學.....	64
4-2-1 變激發密度及不同摻雜濃度之自旋極化率.....	64
4-2-2 變激發密度及不同摻雜濃度之自旋鬆弛時間.....	67
4-2-3 電洞自旋鬆弛時間.....	69
4-3 P 型 GaAs 的自旋動力學.....	71
4-3-1 變激發密度及不同摻雜濃度之自旋極化率.....	71

4-3-2 變激發密度及不同摻雜濃度之自旋鬆弛時間.....	73
4-4 GaAs 量子井與塊材的自旋特性差異	75
4-5 參考文獻	79
第五章 結論.....	80



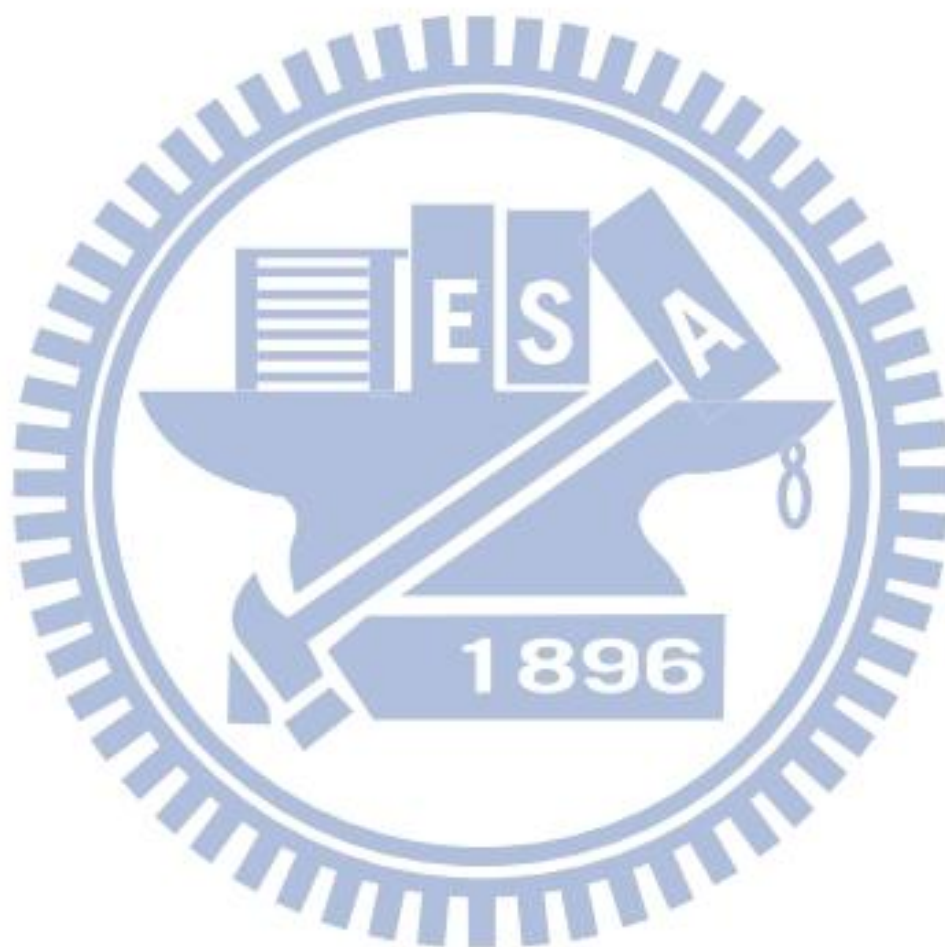
圖目錄

圖 1-1 各種維度的材料之比較.....	1
圖 1-2 電動鬆弛時間受激發密度與溫度的影響.....	3
圖 2-1 接近 Brillouin zone 中心的砷化鎵能帶結構示意圖.....	8
圖 2-2 圓形極化光 σ_{\pm} 對應 m_j 之選擇率(selection rule).....	10
圖 2-3 GaAs Bulk 的光學取向.....	10
圖 2-4 GaAs quantum well 的光學取向.....	11
圖 2-5 電洞鬆弛時間解析量測示意圖.....	12
圖 2-6 電洞鬆弛時間解析.....	12
圖 2-7 電子與電洞熱平衡時的複合放光.....	13
圖 2-8 (a)(001)方向的線性 Dresselhaus field (b) Rashba field.....	16
圖 2-9 兩種自旋鬆弛時間.....	19
圖 2-10 自旋鬆弛三大機制.....	20
圖 2-11 EY 機制自旋耦合導致自旋翻轉.....	23
圖 2-12 DP 鬆弛機制.....	26
圖 2-13 SIA 和 BIA 的 Larmor 進動頻率向量.....	27
圖 3-1 量子井的結構示意圖.....	34
圖 3-2 量子井的能階示意圖.....	34
圖 3-3 LM5192-P, 93-undoped, 94 N 型 GaAs QW 低溫 PL.....	35
圖 3-4 LM5192-P, 93-undoped, 94 N 型 GaAs QW 室溫 PL.....	35
圖 3-5 LM5241-N, 42 P 型 GaAs QW 室溫 PL.....	36
圖 3-6 介電物質於電場中.....	38
圖 3-7 物質產生的極化現象.....	39
圖 3-8 極化強度與電場的線性與非線性關係.....	40
圖 3-9 考慮高階項時的非線性關係.....	40
圖 3-10 二階項的光學轉換.....	41
圖 3-11 二階項的轉換訊號(a)和頻 (b)差頻 (c)倍頻.....	42
圖 3-12 非共線二階項的光學轉換.....	43
圖 3-13 物質在不同波長時，折射率的改變.....	44
圖 3-14 相位不匹配.....	45
圖 3-15 光學軸.....	46
圖 3-16 當波行進方向平行光學軸.....	46
圖 3-17 正型與負型雙折射晶體.....	47
圖 3-18 Type I 負型晶體頻率轉換示意圖.....	48
圖 3-19 Type II 負型晶體頻率轉換示意圖.....	48
圖 3-20 藉由調整角度達到相位匹配.....	49
圖 3-21 整套 TRPL 系統的架設圖.....	51

圖 3-22 Up-conversion 光學組件的架設圖.....	51
圖 3-23 和頻訊號輸出.....	51
圖 3-24 不同型式的偏振光.....	53
圖 3-25 圓偏振光的示意圖.....	54
圖 3-26 Up-conversion 加裝偏光鏡的架設圖.....	55
圖 4-1 (a)GaAs QW 自旋時間解析光譜 (b)自旋極化率.....	57
圖 4-2 GaAs QW 自旋極化率擬合曲線.....	58
圖 4-3 (a)GaAs bulk 光激發過程(b)GaAs QW 光激發過程.....	59
圖 4-4 GaAs bulk 不同激發密度下，自旋極化率的擬合曲線.....	59
圖 4-5 undoped GaAs QW 不同激發密度下，起始極化率的變化.....	60
圖 4-6 undoped GaAs QW 不同激發密度下，自旋極化率的擬合曲線..	61
圖 4-7 undoped GaAs QW 在不同激發密度的自旋鬆弛時間.....	61
圖 4-8 (a)GaAs QW 低激發密度自旋時間解析光譜 (b)自旋極化率....	62
圖 4-9 undoped GaAs QW 低激發密度的自旋極化率擬合曲線.....	63
圖 4-10 低濃度摻雜 n-GaAs QW 之自旋極化率的擬合曲線.....	64
圖 4-11 高濃度摻雜 n-GaAs QW 之自旋極化率的擬合曲線.....	65
圖 4-12 n-GaAs QW 不同激發密度下，自旋極化率的變化.....	65
圖 4-13 n-GaAs QW 光激發過程.....	67
圖 4-14 n-GaAs QW 在不同激發密度的自旋鬆弛時間.....	68
圖 4-15 undoped GaAs QW 在不同激發密度的自旋鬆弛時間.....	68
圖 4-16 n-GaAs QW 低激發密度自旋時間解析光譜與自旋極化率擬合	70
圖 4-17 GaAs QW 低激發密度自旋時間解析光譜與自旋極化率擬合....	70
圖 4-18 p-GaAs QW 不同激發密度下，自旋極化率的變化.....	72
圖 4-19 低濃度摻雜 p-GaAs 量子井之自旋極化率的擬合曲線.....	72
圖 4-20 高濃度摻雜 p-GaAs 量子井之自旋極化率的擬合曲線.....	73
圖 4-21 p-GaAs QW 在不同激發密度的自旋鬆弛時間.....	74
圖 4-22 (a)GaAs bulk (b)GaAs QW 自旋極化率的擬合曲線.....	75
圖 4-23 不同摻雜濃度的 n-GaAs QW 自旋極化率的擬合曲線.....	76

表目錄

表 2-1 Γ 的角動量與自旋波函數(wave function).....	9
表 4-1 undoped GaAs QW 不同激發密度下的起始極化率.....	61
表 4-2 undoped GaAs 塊材自旋鬆弛時間.....	76
表 4-3 undoped GaAs 量子井自旋鬆弛時間.....	76



第一章 緒論

1-1 前言

由於半導體元件尺寸越做越小，隨著微影技術和製程的改進，元件尺寸已經可以做到奈米等級，奈米化半導體的能隙會隨粒徑變小而增大，激發與發光波長亦隨之變小，這種現象稱為量子侷限效應 (quantum confinement effect)。在奈米尺寸中，電子的波動特性會展現出來，此時古典力學不適合描述電子運動，而須考慮量子力學。

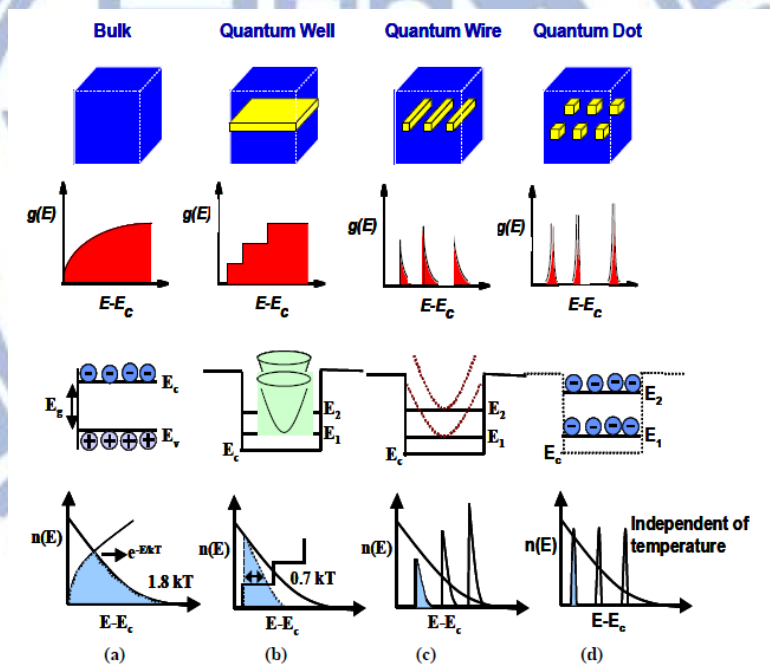


圖 1-1 各種維度的材料之比較

奈米半導體材料可依其幾何形態，分成零維、一維、二維及三維材料。在量子力學上，則分別定義這些不同維次的材料為量子點 (quantum dots)、量子線 (quantum wires)、量子井 (quantum wells) 及塊材 (bulk) 材料，如圖 1-1。不同維次的材料，在能階密度分布上

有很大的差異。由三維塊材變成零維量子點時，內部的電子在各方向上運動都受到侷限，連續式的能階密度分布則變成完全離散。這些能階密度的變化給予科學家們更大的空間去設計不同元件。

1-2 文獻回顧

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[1.1][1.2]，並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' 發現擁有反稱不對稱(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[1.3]，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[1.4]，這三個機制開啟了一系列對半導體自旋鬆弛的研究。

1978 年，Titkov 等人利用 Hanle 測量實驗證實在砷化鎵塊材(GaAs bulk)中，由於重電洞和輕電洞價帶的強烈混合，造成電洞自旋鬆弛遠比電子來的快速[1.5][1.6]。

而在量子井早期的實驗研究，也有人認為量子井中電洞的自旋鬆弛很快[1.7]，因此，更意外地發現在低溫下，n 型 GaAs/ AlGaAs 量子井在圓偏振光的光激發下，極化率可以接近 $\sim 100\%$ [1.7] [1.8]

[1.9]，暗示極化率應該是受光激發的電洞及較長的電洞鬆弛時間所控制。此外，Rhoussignol 和 Damen 等人利用時間解析光譜分別測量到 GaAs/ AlGaAs 量子井中重電洞的自旋鬆弛時間：4K 約 1 ns 及 10K 約 4 ps [1.10] [1.11]。

在 1990 年，Uenoyama, Sham, Ferreira 和 Bastard 進一步指出量子井中的重電洞鬆弛是受到動量的影響，而量子井重電洞和輕電洞的位能分裂使其在 Brillouin zone 中心去耦合(decouple)，導致在 zone 中心的自旋鬆弛時間會極長，但會受到類似傳導電子過程的限制，由於重電洞與輕電洞能帶的混合，在有限的動量下自旋鬆弛時間將下降非常迅速。如圖 1-2 所示，在低溫下，電洞的熱分布將非常靠近 zone 中心，因此，電洞擁有較長的自旋鬆弛時間，但隨著溫度的增加，電洞的自旋鬆弛時間會因為熱激發得到動量而下降。

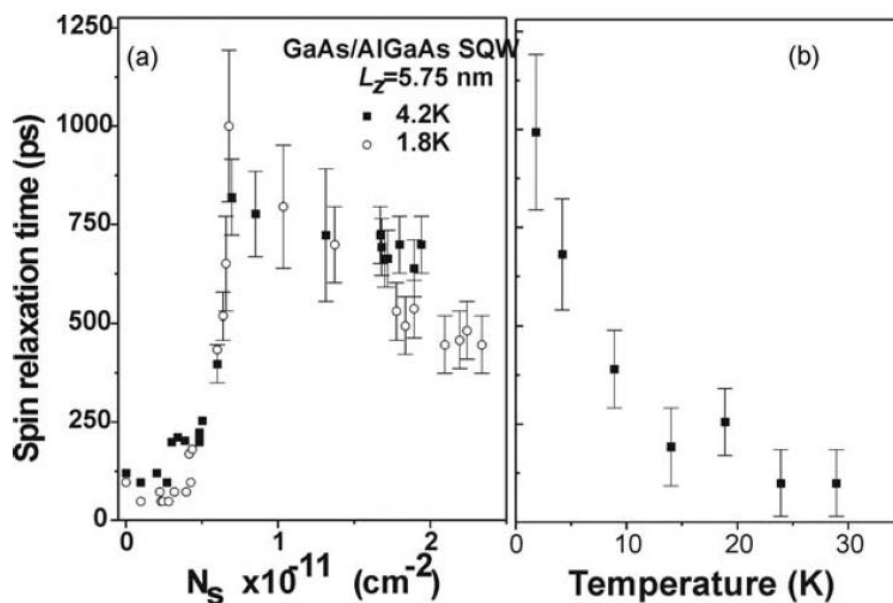
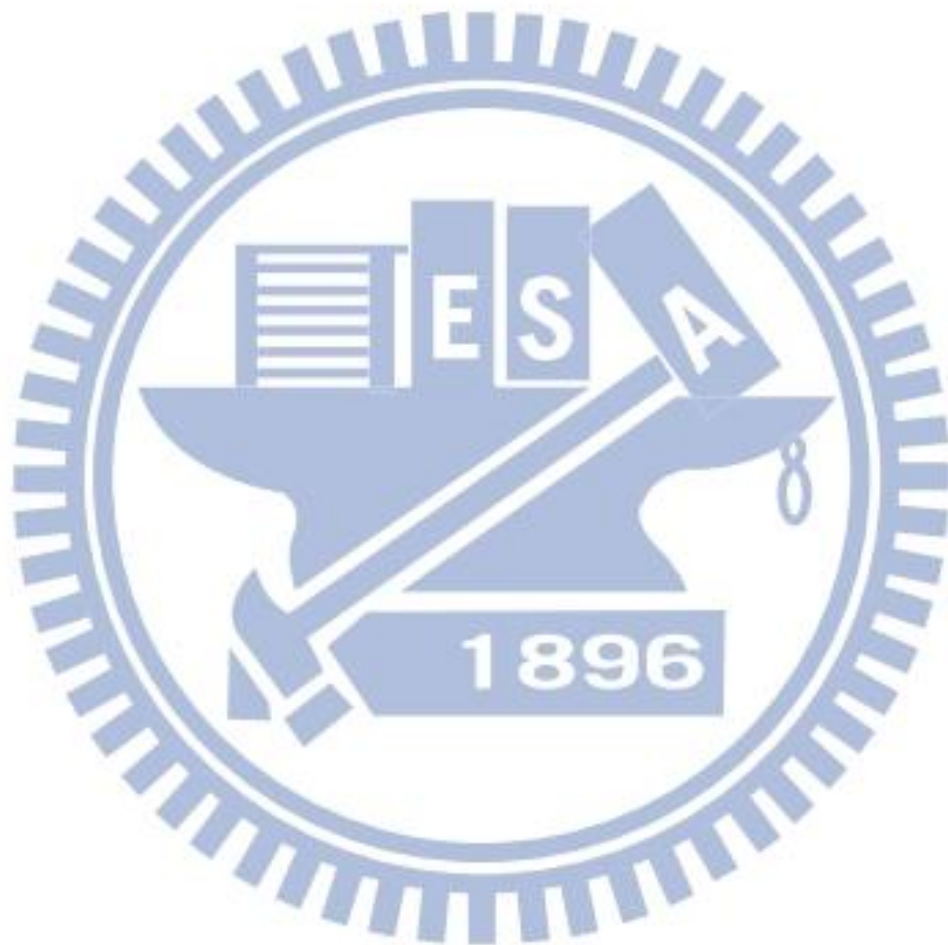


圖 1-2 電洞鬆弛時間受激發密度與溫度的影響

近幾年，由於(110)量子井在室溫下擁有較長的自旋鬆弛時間，許多人開始使用(110)量子井做量測，並在室溫下觀察到 ns 等級的自旋鬆弛時間[1.12] [1.13]



1-3 研究動機

自旋動力學為一個由多學科交叉而形成的新興領域，以自旋自由度為研究對象並發展新型自旋電子元件為目標，在近十年間取得令人矚目的進展。在實現自旋電子元件中有兩個非常重要的問題：如何延長自旋鬆弛時間以及如何有效地控制自旋。

不同維次的材料，在能階密度分布上有很大的差異，由三維塊材變成二維量子井時，內部的電子單一方向上運動受到侷限。我們將三維空間自由運動的粒子束縛在一個平面區域，形成量子井(quantum well)，由於 GaAs 和 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 存在的晶格不匹配在界面間形成一個應力，界面受到平行於平面的剪切應力和垂直於平面的垂直應力影響，晶格對稱性遭到破壞，價帶能接產生了位移和分裂出重電洞(heavy hole)和輕電洞(light hole)兩個不同的能階。因此相較於砷化鎵塊材(GaAs bulk)，GaAs / $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 量子井的初始極化率理論上可以達到 100%

因此，希望利用本質、n 型和 p 型砷化鎵量子井及塊材，由自旋鬆弛時間解析光譜來探討二維量子井與三維塊材的自旋特性差異，並進一步探討量子井中光激發電洞對極化率造成的影響。

1-4 参考文献

- [1.1] R. J. Elliott, Phys. Rev. 96, 266 (1954).
- [1.2] Y. Yafet, Solid State Phys. 14, 1 (1963).
- [1.3] M. D'yakonov and V. Perel', Sov. Phys. JETP Lett. 13, 144 (1971).
- [1.4] G. L. Bir, A.G. Aronov and G. E. Pikus, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 69, 1382(1975).
- [1.5] F. Meier, B.P. Zakharchenya (Eds.), Optical Orientation, 1984.
- [1.6] A.N. Titkov, V.I. Safarov, G. Lampel, in Proc. ICPS 14, Edinburgh p. 1031, (1978)
- [1.7] A.E. Ruckenstein, S. Schmitt-Rink, R.C. Miller, Phys. Rev. Lett. 56, 504 (1986)
- [1.8] M.J. Snelling, Optical orientation in quantum wells, PhD Thesis, Southampton (1991)
- [1.9] M.J. Snelling, A.S. Plaut, G.P. Flinn, R.T. Harley, A.C. Tropper, T.M. Kerr, J. Lumin. 45,208 (1990)
- [1.10] Ph. Roussignol, R. Ferreira, C. Delalande, G. Bastard, A. Vinattieri, J. Martinez-Pastor, L. Carraresi, M. Colocci, J.F. Palmier, B. Etienne, Surf. Sci. 305, 263 (1994)
- [1.11] T. Damen, L. Vinã, J.E. Cunningham, J. Shah, L.J. Sham, Phys. Rev. Lett. 67, 3432 (1991)
- [1.12] Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi et al., Phys. Rev. Lett. 83, 4196 (1999).
- [1.13] L. Lombez¹, D. Lagarde¹, et al., Phys. Stat. Sol. (c) 4, No. 2, 475–477 (2007)

第二章 自旋軌道耦合與自旋鬆弛機制

2-1 自旋極化

隨著科學的進步以及製程與製作技術上的改良與突破，磁性薄膜的研究發展從金屬、氧化物等材料，正逐漸朝向半導體電子應用的材料發展。半導體積體電路具有高集積度、高訊號處理速度以及極佳的可靠度，利用載子(電子與電洞)的電荷性質，藉由外加電場來控制半導體中載子的流動。然而，積體電路為達到更快速更密集的需求時，奈米級尺寸的元件開發勢在必行，此時載子間自旋有關的交換交互作用(exchange interaction)必須加以考量，因而電子的自旋特性將更為重要，而如何有效的產生自旋極化(spin polarization)訊號更成為發展自旋電子元件的重要關鍵。

多年以前，因為缺乏良好的自旋極化電子源(Spin-Polarized Electron Source)，相關的研究較為稀少，直到以砷化鎵(GaAs)作為自旋極化電子源出現[2.1]，砷化鎵更被證明是許多原子、原子核和粒子物理實驗的重要的途徑。砷化鎵是直接能隙(direct bandgap)的半導體材料，其光電特性遠比非直接能隙的材料(如 Si)佳。

電子自旋解析除了測量光電子的動能和動量外，必須測量光電子的自旋極化光[2.2]，光電子的躍遷過程必須滿足選擇率(selection rule)，角動量守恆(conservation law of angular momentum)才能

使光電子躍遷，光電子的躍遷現象只在 $\Delta l = l' - l$ 為 ± 1 的條件下發生，若物質被線性偏振光激發， $\Delta m = m' - m$ 必須是 0 時光電子才會被激發，若激發光源為圓偏振光， $\Delta m = m' - m$ 必須是 ± 1 。而自旋極化 (spin polarization, P_n) 的定義為

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

其中 n_{\uparrow} (n_{\downarrow}) 則是自旋平行於磁場 (反平行) 量子方向的數量

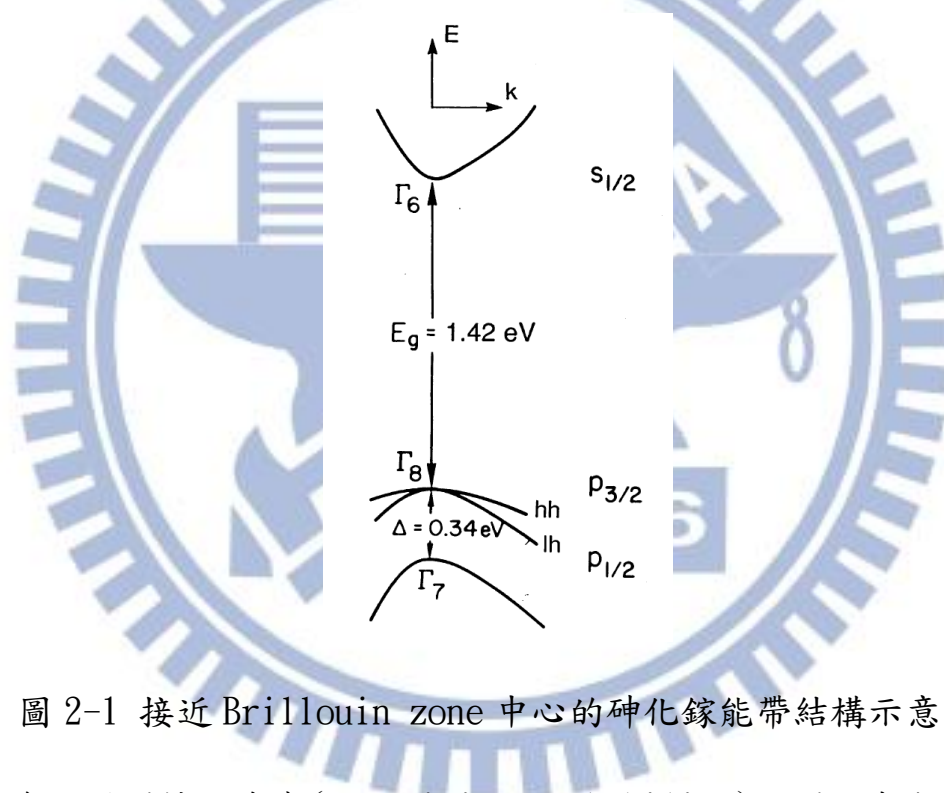


圖 2-1 接近 Brillouin zone 中心的砷化鎵能帶結構示意圖

為了得到轉移機率 (transition probability)，選定角動量量子化 \hat{z} 軸垂直於晶體表面，並使用 σ^{\pm} 來表示極化光的左右旋，而 σ^{\pm} 光學轉移 (optical transitions) 偶極算子 (dipole operator)

$$\text{dipole operator} \propto (X \pm iY) \propto Y_1^{\pm 1} \quad (2.2)$$

Y_l^m 為球諧函數 (spherical harmonic)

由表 2-1 和圖 2-2，並根據 Fermi-Golden Rule[2.3]，在單位時間內電子由初狀態 $|i\rangle$ 到末狀態 $|f\rangle$ 的躍遷率為

$$P_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H_{rad} | i \rangle|^2 \cdot \delta(E_i - E_f \pm \hbar\omega) \quad (2.3)$$

可以推導出重電洞(heavy hole, $|m_j = -3/2\rangle$)和輕電洞(light hole, $|m_j = -1/2\rangle$)之間的 σ^+ 相對轉移機率(transition probability)為

$$\frac{|\langle 1/2, -1/2 | Y_1^1 | 3/2, -3/2 \rangle|^2}{|\langle 1/2, 1/2 | Y_1^1 | 3/2, -1/2 \rangle|^2} = 3 \quad (2.4)$$

其他的相對轉移機率則可依此類推，如圖 2-2

表 2-1 Γ 的角動量與自旋波函數(wave function)

Symmetry	$ J, m_j\rangle$	Wave function
Γ_6	$ 1/2, 1/2\rangle$	$ S\uparrow\rangle$
	$ 1/2, -1/2\rangle$	$ S\downarrow\rangle$
Γ_7	$ 1/2, 1/2\rangle$	$ -(1/3)^{1/2}[(X+iY)\downarrow - Z\uparrow]\rangle$
	$ 1/2, -1/2\rangle$	$ (1/3)^{1/2}[(X-iY)\uparrow + Z\downarrow]\rangle$
Γ_8	$ 3/2, 3/2\rangle$	$ (1/2)^{1/2}(X+iY)\uparrow\rangle$
	$ 3/2, 1/2\rangle$	$ (1/6)^{1/2}[(X+iY)\downarrow + 2Z\uparrow]\rangle$
	$ 3/2, -1/2\rangle$	$ -(1/6)^{1/2}[(X-iY)\uparrow - 2Z\downarrow]\rangle$
	$ 3/2, -3/2\rangle$	$ (1/2)^{1/2}(X-iY)\downarrow\rangle$

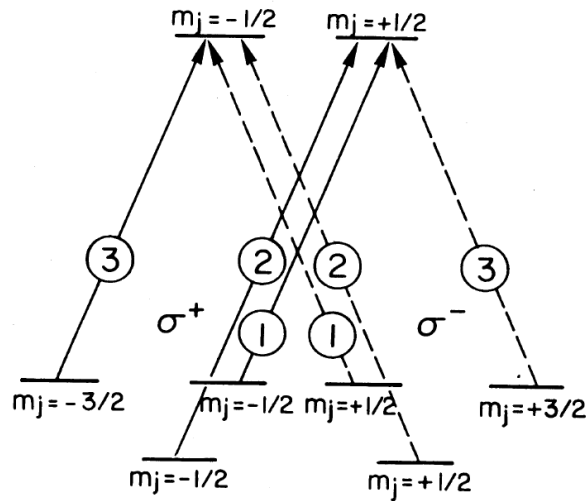


圖 2-2 圓形極化光 σ^\pm 對應 m_j 之選擇率(selection rule)

因此砷化鎵塊材(GaAs Bulk)的初始極化率為

$$P_n(t=0) = P_0 = \frac{n_\downarrow - n_\uparrow}{n_\downarrow + n_\uparrow} = \frac{3 - 1}{3 + 1} = \frac{1}{2} \quad (2.5)$$

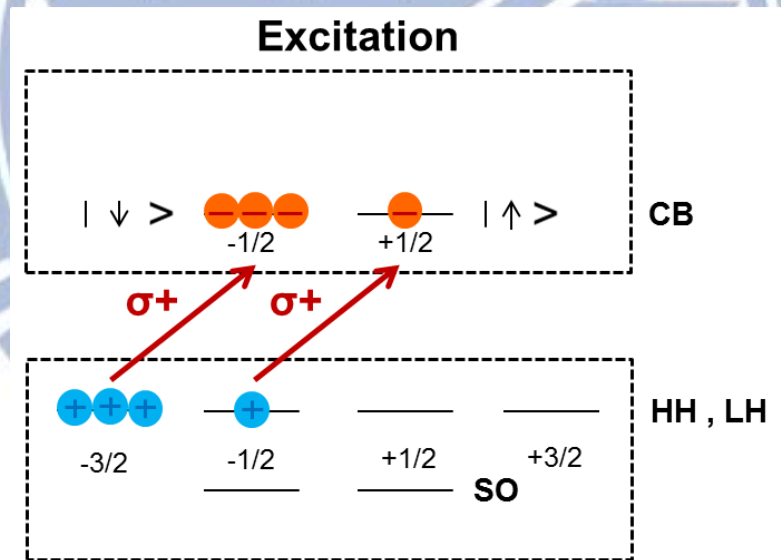


圖 2-3 GaAs Bulk 的光學取向

當我們把三維空間自由運動的粒子束縛在一個平面區域，形成量子井(quantum well)，如將砷化鎵(GaAs)夾著兩層擁有較大的能隙的材料，像是鋁砷化鎵($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$)，因為 GaAs 和 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 存在的晶格

不匹配在界面間形成一個應力，界面受到平行於平面的剪切應力和垂直於平面的垂直應力影響，晶格對稱性遭到破壞，價帶能階產生了位移和分裂出重電洞(heavy hole)和輕電洞(light hole)兩個不同的能階。因此相較於砷化鎵塊材(GaAs Bulk)，GaAs / Al_xGa_{1-x}As 量子井的藉由激發重電洞，初始極化率理論上可以達到 100%，如圖 2-4

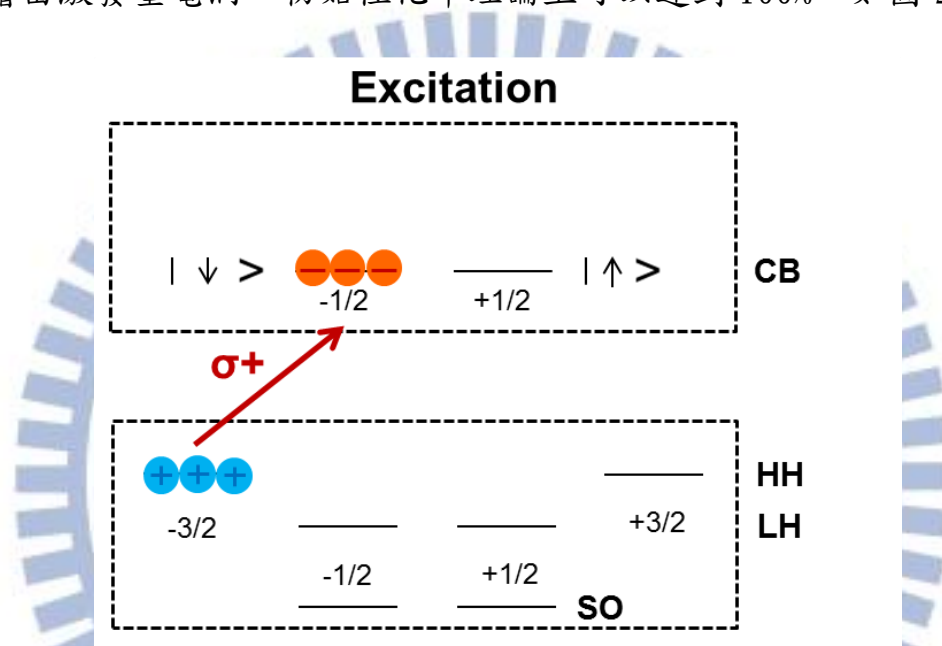


圖 2-4 GaAs quantum well 的光學取向

由於電洞受到自旋軌道耦合(spin-orbit coupling)的影響，導致自旋極化迅速衰退。當利用 pump probe 系統，以波長 800nm(1.55eV) 的 σ^+ 入射光激發，分別讀取波長為 3200nm、3000nm 和 3800nm 的 σ^+ 和 σ^- ，如圖 2-5，並由圖 2-6 的結果，推算出重電洞自旋鬆弛(heavy hole spin relaxation)時間大約為 $110\text{fs} \pm 10\%$ ，相較於電子自旋鬆弛時間還要短，因此可以假設當電子與電洞熱平衡後，電洞已不具有自旋極化[2.4]。

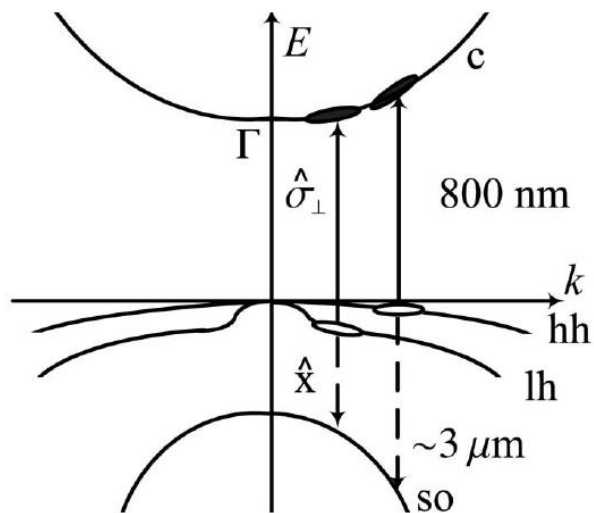


圖 2-5 電洞鬆弛時間解析量測示意圖

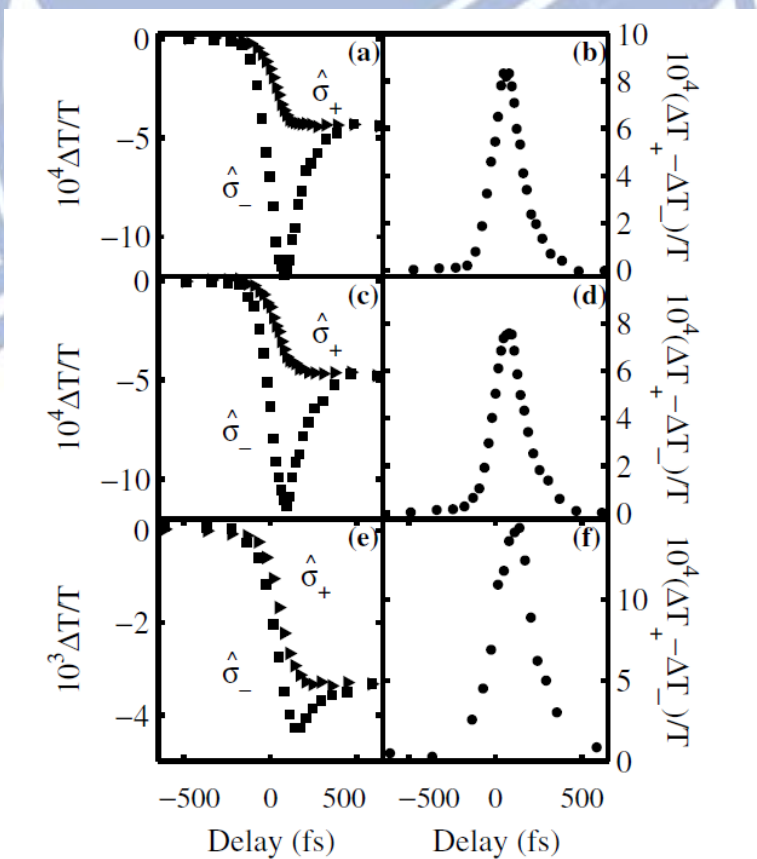


圖 2-6 電洞鬆弛時間解析

因此在熱平衡時間 τ ，當電子和電洞複合放射出 σ^+ 和 σ^- 時，如圖 2-7，

螢光的圓偏極化率(the degree of circular polarization)為

$$P_{circular} = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = \frac{(n_{\uparrow} + 3n_{\downarrow}) - (3n_{\uparrow} + n_{\downarrow})}{(n_{\uparrow} + 3n_{\downarrow}) + (3n_{\uparrow} + n_{\downarrow})} = \frac{1}{4} \quad (2.6)$$

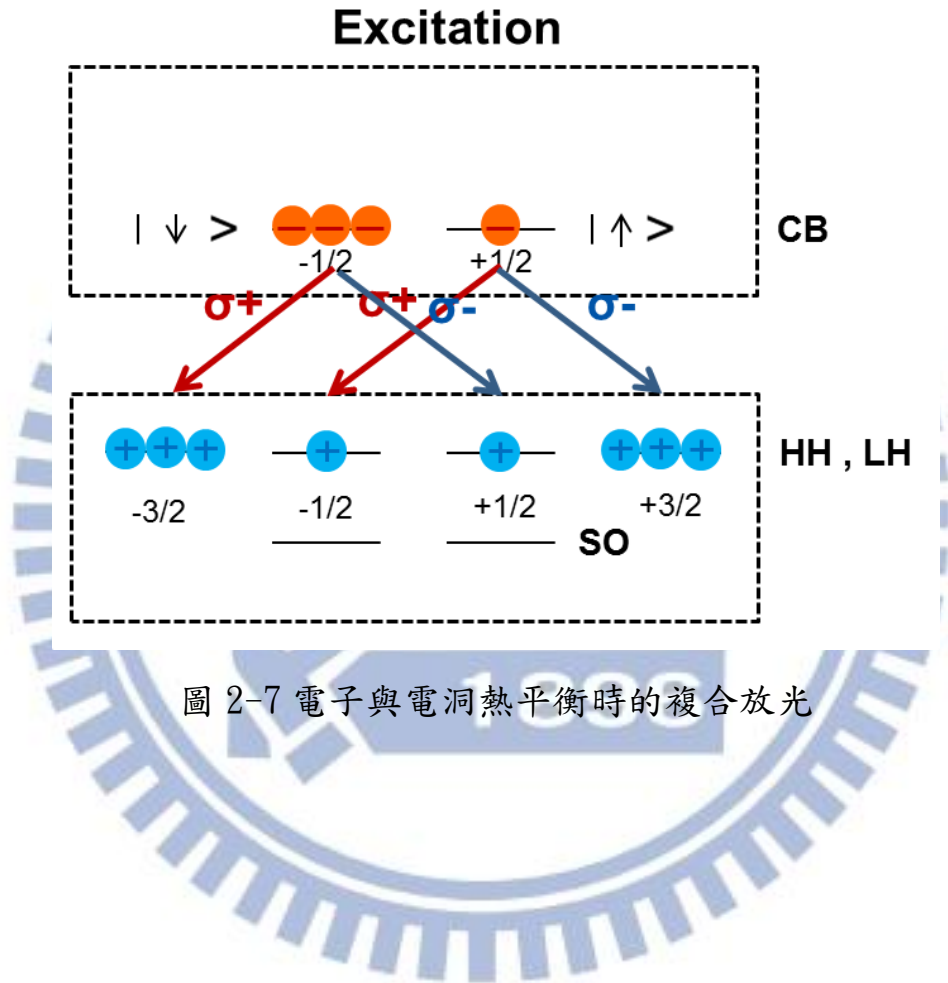


圖 2-7 電子與電洞熱平衡時的複合放光

2-2 自旋軌道耦合(spin-orbit coupling, SOC)

在缺乏反稱對稱(inversion symmetry)的晶體結構中，如砷化鎵(GaAs)，因為自旋軌道的交互作用力(spin-orbit interaction)下，導致跟自旋相關的能階分裂。而在半導體中的反稱不對稱主要來源可以分類成三種。第一種是塊材反稱不對稱(bulk inversion asymmetry)，其來自於晶體結構缺乏反稱中心，如硫化鋅晶體結構(zinc blende structure)。另外一種非對稱性則是由於在結構外加電場或是結構組成的不對稱性，稱做結構反稱不對稱(structural inversion asymmetry)。最後一種則是介面不對稱性(interface asymmetry)，是由於在材料介面下原子的聯結不同(聯結鍵或是鍵結方向)所造成。一般情況下，對於在半導體下的電子自旋軌道交互作用，我們大多只考量前兩類反稱不對稱。

因此，在三五族半導體中自旋軌道耦合 H_{so} 可以分成兩項，Dresselhaus 與 Rashba 項[2.5] [2.6] [2.7]，分別來自於基體反稱不對稱及結構反稱不對稱。

自旋軌道耦合可以由造成電子自旋進動(precession)並與動量 \vec{k} 相關的磁場 $\vec{B}_i(\vec{k})$ 來描述，在通常的情況下，我們會使用對應於自旋進動的 Larmor precession frequency vector $\vec{\Omega}(k)$ 來描述自旋分裂。

此時，自旋軌道的交互作用力以 Hamiltonian 表示為

$$H_{so} = \hbar \sigma \cdot \vec{\Omega}(k) \quad (2.7)$$

其中， σ 代表 Pauli 向量矩陣

在砷化鎵塊材(Bulk GaAs)結構中，Dresselhaus 項 $\vec{\Omega}(k)$ 在三維電子系統表示成[2.7]

$$\vec{\Omega}(k)_{BIA} = \frac{\gamma}{\hbar} \cdot [k_x(k_y^2 - k_z^2), k_y(k_z^2 - k_x^2), k_z(k_x^2 - k_y^2)] \quad (2.8)$$

γ 是 GaAs 自旋分裂的參數[2.8]，與材料有關的常數，對於狹窄能隙半導體(如 InAs, GaSb 及 InSb)其數值是 GaAs 的數倍以上。

在量子井中，受到沿著長晶方向的阻隔層(barrier)限制，因此動量 k 可以被量子化。這個部分可得到第一個近似值： $\langle k_z^2 \rangle$ 的期望值為 $(\frac{\pi}{d})^2$ ，而 d 為量子井的寬度。在沿著(001)表面生成的量子井中，可以得到[2.9]

$$\vec{\Omega}(k)_{BIA(2D)} = \frac{\gamma}{\hbar} \cdot [k_x(k_y^2 - \langle k_z^2 \rangle), k_y(\langle k_z^2 \rangle - k_x^2), 0] \quad (2.9)$$

而在 2D 的電子系統中，平面上的動量 $(k_{\parallel})^2$ 遠小於 $\langle k_z^2 \rangle$ ，因此，平面上的動量 $\langle k_z^2 \rangle$ 通常可以省略，並進一步得到第二個近似值，如圖 2-8(a)

$$\vec{\Omega}(k)_{D001} = \frac{\beta}{\hbar} \cdot [-k_x, k_y, 0] \quad (2.10)$$

其中 $\beta = \gamma \langle k_z^2 \rangle$

這個近似值由於和平面上的動量 $k_{\parallel} = (k_x, k_y)$ 呈線性關係，通常被稱作線性 Dresselhaus 項(linear Dresselhaus term)

在量子井中，因為結構反稱不對稱(structural inversion asymmetry)導致自旋軌道耦合的第二項，稱為 Rashba 項，如圖 2-8(b)

$$\vec{\Omega}(\mathbf{k})_{\text{Rashba}} = \frac{\alpha}{\hbar} \cdot [k_y, k_x, 0] \quad (2.11)$$

而我們可以藉由兩邊使用不同材質當阻隔層(barrier)或是只用單一阻隔層，最後也可利用不對稱的 doping 濃度來造成結構反稱不對稱(structural inversion asymmetry)。Rashba 參數 α 則受到不對稱方向的影響，來調整正或副值，另外值得注意的是，Rashba 項不像 Dresselhaus 項，並不會受量子井生長方向的影響。Rashba field 永遠在量子井平面上並平行電子波向量 \mathbf{k} 。

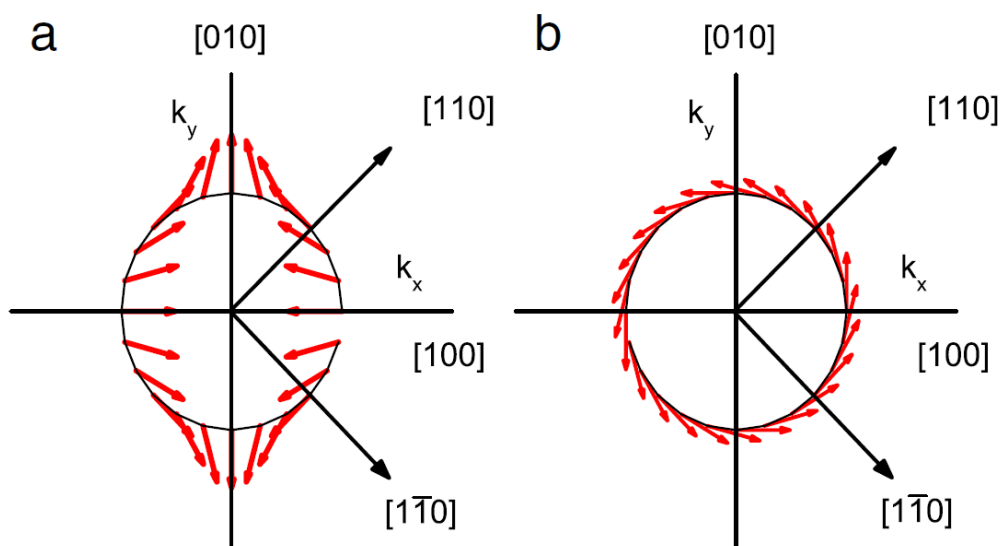


圖 2-8 (a)(001)方向的線性 Dresselhaus field (b) Rashba field

2-3 自旋鬆弛

當我們利用光學取向(optical orientation)來產生非平衡的自旋極化，而外在的激發源移除時，自旋極化訊號的平衡過程即是自旋鬆弛。對於自旋鬆弛(spin relaxation)和自旋去相位(spin dephasing)的常見描述可以追溯到 Bloch 方程式[2.10]，這個方程式可以解釋磁場中的自旋極化動力學。因此先以 Bloch-Torrey 方程式來定義自旋鬆弛時間，並接著介紹自旋鬆弛的三大機制。

2-3-1 Bloch-Torrey 方程式

對於可移動的電子，我們利用電子磁化的自旋進動(spin precession)、衰退(decay)及擴散(diffusion)的方程式來定義自旋鬆弛時間(縱向的) T_1 和自旋去相位時間(橫向的) T_2 ，磁場為

$$\mathbf{B}(t) = B_0 \hat{z} + B_1(t) \quad (2.12)$$

其中 B_0 為 \hat{z} 方向外加一個縱向靜磁場， B_1 則是垂直於 z 軸的縱向震盪場(transverse oscillating field)。在磁場 $\mathbf{B}(t)$ 中的電子磁化的自旋進動為

$$\frac{\partial M_x}{\partial t} = \gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{B})_x - \frac{M_x}{T_2} + D\nabla^2 M_x \quad (2.13)$$

$$\frac{\partial M_y}{\partial t} = \gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{B})_y - \frac{M_y}{T_2} + D\nabla^2 M_y \quad (2.14)$$

$$\frac{\partial M_z}{\partial t} = \gamma(M \times B)_z - \frac{M_z - M_z^0}{T_1} + D\nabla^2 M_z \quad (2.15)$$

其中 $\gamma = \frac{\mu_B g}{\hbar}$ 是電子磁旋比 (electron gyromagnetic ratio)， μ_B 是波耳磁子 (Bohr magneton)、 g 是對 Zeeman 分裂的 g 因子。

自旋鬆弛時間 (spin relaxation time) 通常被稱作 T_1 時間又稱為自旋縱向或自旋-晶格鬆弛 (spin longitudinal or spin-lattice relaxation) 時間，由式 (2.15) 所示， $\frac{1}{T_1}$ 代表在非平衡的自旋極化下，沿著 z 方向的靜磁場 B_0 ，藉由聲子放熱從高能階 $|\uparrow\rangle$ 鬆弛至低能階 $|\downarrow\rangle$ 的速率大小。而自旋去相位時間 (spin dephasing time) 通常被稱作 T_2 時間又稱為自旋橫向或自旋去相干鬆弛 (spin transverse or spin decoherence) 時間，由式 (2.13) 和 (2.14) 所示，描述是以垂直靜磁場 B_0 方向的同相位自旋，因受到自旋間的散射作用，造成進動頻率 (precessing frequencies) 在空間及時間上波動，而自旋相位逐漸損失的過程，相較於自旋鬆弛時間 T_1 ，自旋去相位並不會有能量的損失，如圖 2-9。

但大多數的實驗並非測量於單一自旋 (single-spin) 系統，而是測量整體的自旋，例如一定濃度參雜的半導體樣品，在整體下通常會造成不均勻 (inhomogeneous)，因此整體觀察下的自旋去相位時間 T_2^* 則通常會短於單一自旋去相位時間 T_2 。

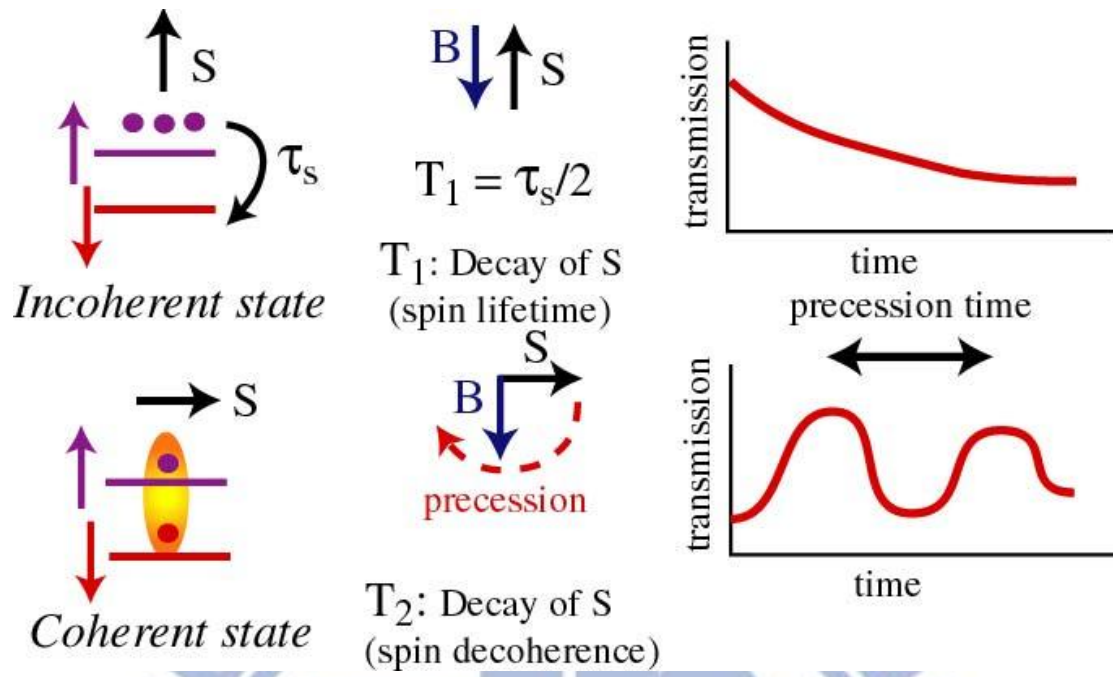


圖 2-9 兩種自旋鬆弛時間



2-3-2 自旋鬆弛機制

在半導體中，有重要的三種機制用來解釋導電帶中的自旋鬆弛，分別為 EY 機制、DP 機制及 BAP 機制，如圖 2-10，(1)EY 機制跟自旋與相反方向自旋能階混合相關，由離子誘導的自旋軌道耦合造成；(2)DP 機制跟形成有效磁場造成自旋鬆弛相關，由具有反稱不對稱的材料引發自旋軌道耦合造成；(3)BAP 機制則是 P 型半導體中重要的機制，由於電子和電洞的交換作用 (electron-hole exchange interaction)，引起本身的磁場波動並造成自旋翻轉。

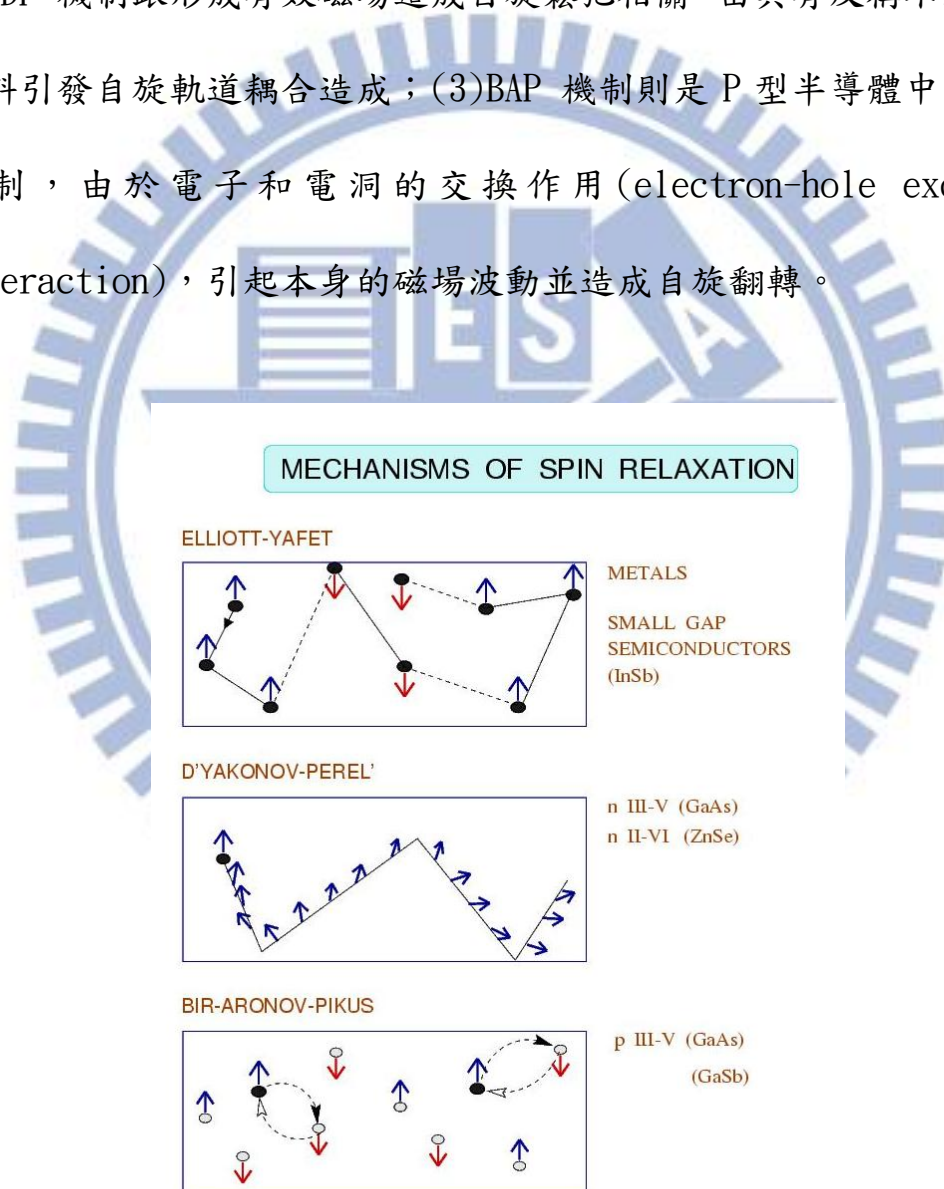


圖 2-10 自旋鬆弛三大機制

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

Elliott 1955 年首次發現到當晶體離子誘導產生自旋軌道耦合，自旋電子會藉由聲子或是雜質產生動量散射，引發自旋翻轉 (spin-flip)，導致自旋電子的鬆弛[2.11]，如圖 2-11。

因為自旋軌道交互作用力的存在，Hamiltonian 的描述為

$$H_{SO} = \frac{\hbar}{4m^2c^2} \nabla V_{SC} \times \hat{p} \cdot \hat{\sigma} \quad (2.16)$$

M 為自由電子的質量， V_{SC} 為純的晶格位能 (spin-independent)， $\hat{p} \equiv -i\hbar\nabla$ 為線性動量算符， σ 代表 Pauli 向量矩陣，且此時單一電子的 Bloch 波函數不再是 σ_z 的 eigenstate，而是 Pauli 自旋向上 $|\uparrow\rangle$ 與自旋向下 $|\downarrow\rangle$ 的能階混合。

當固體擁有中心對稱，上述 Elliott 所描述的情況，Bloch 自旋向上 $|\uparrow\rangle$ 與自旋向下 $|\downarrow\rangle$ 的能階可以由晶格動量 (lattice momentum) k 和能帶指標 (energy index) n 寫成

$$\Psi_{kn\uparrow}(r) = [a_{kn}(r)|\uparrow\rangle + b_{kn}(r)|\downarrow\rangle]e^{ik\cdot r} \quad (2.17)$$

$$\Psi_{kn\downarrow}(r) = [a_{-kn}^*(r)|\downarrow\rangle + b_{-kn}^*(r)|\uparrow\rangle]e^{ik\cdot r} \quad (2.18)$$

這兩個 Bloch 為簡併能階且為空間和時間對稱。

為了方便由已知的鍵結和聲子結構計算聲子誘導 (phonon-induced) 的 $\frac{1}{\tau_s}$ ，Yafet(1963) 有組織地提出相對應的理論[2.12]，聲子散射 (phonon scattering) 造成的自旋鬆弛速率可以由 Eliashberg 自旋翻

轉方程式 $\alpha_s^2 F(\Omega)$ 來解釋

$$\frac{1}{\tau_s} = 8\pi T \int_0^\infty d\Omega \alpha_s^2 F(\Omega) \frac{\partial N(\Omega)}{\partial T} \quad (2.19)$$

其中 $N(\Omega)$ 為聲子分布方程式

$$N(\Omega) = \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\Omega}{k_B T}\right) - 1} \quad (2.20)$$

而Eliashberg自旋翻轉方程式 $\alpha_s^2 F(\Omega)$ 的主要貢獻是讓我們得知頻率 Ω 的聲子自旋翻轉電子-電洞交互作用力 (spin-flip electron-phonon interaction)。

$$\alpha_s^2 F(\Omega) = \frac{g_s}{2M\Omega} \sum_{\nu} \langle\langle g_{kn\uparrow, k'm'\downarrow}^{\nu} \delta(\omega_{q\nu} - \Omega) \rangle\rangle_{kn} \quad (2.21)$$

其中 g_s 為每個自旋及原子在Fermi能階下的電子能階數量， M 為離子質量。

最後，為了得到半導體中EY自旋鬆弛時間 τ_{EY} 的實驗計算，我們對於鍵結及聲子結構使用近似法，得到在三五族半導體中能量 E_k 的導電帶電子自旋鬆弛時間方程式

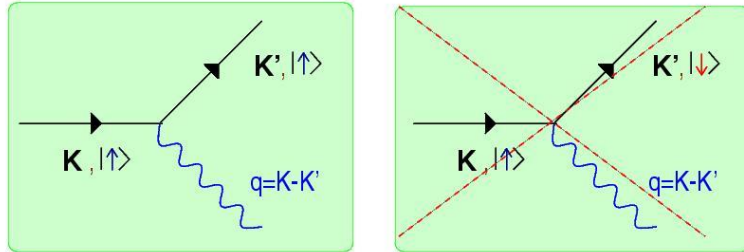
$$\frac{1}{\tau_{EY}(E_k)} = A \left(\frac{\Delta_{SO}}{E_g + \Delta_{SO}} \right)^2 \left(\frac{E_k}{E_g} \right)^2 \frac{1}{\tau_k(E_k)} \quad (2.22)$$

其中 E_g 為能隙 (energy bandgap)， Δ_{SO} 是價帶的自旋軌道分裂能， τ_k 是動量鬆弛時間， A 是無因次常數，與主導散射的機制相關 (電荷或中性的雜質、聲子或電子-電洞)。

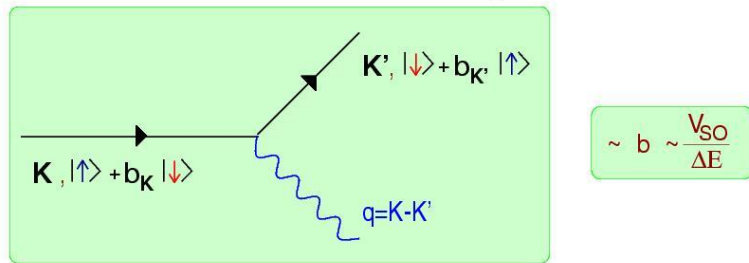
BASICS OF THEORY

Elliott-1954, Yafet-1963

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



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



$$\frac{1}{T_1} = \Gamma_{\text{up-down}} \sim \langle b^2 \rangle_{FS} \cdot \Gamma_{\text{up-up}}$$

$$\sim \langle b^2 \rangle_{FS} \cdot \rho$$

圖 2-11 EY 機制自旋耦合導致自旋翻轉

由式(2-22)可看出 EY 機制的鬆弛時間 τ_{EY} 正比於動量鬆弛時間 τ_k ，表示強動量散射會導致快速的自旋鬆弛，而弱動量散射有助於延遲自鬆弛的時間。

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

DP 機制為 GaAs bulk 和 quantum well 結構上在低溫時最主要的自旋鬆弛機制，1971 年 D' yakonov and Perel' 發現因為系統中缺乏反稱對稱，導致自旋軌道耦合並造成自旋鬆弛[2.13]。由於 Bravais 晶格中存在兩種不同的原子，造成反稱不對稱，因此電子 Pauli 自旋向上 $|\uparrow\rangle$ 與自旋向下 $|\downarrow\rangle$ 的動量能階並不簡併($E_{k\uparrow} \neq E_{k\downarrow}$)，而反稱不對稱誘導的自旋分裂可以先由介紹 Larmor 頻率 $\Omega(k) = \left(\frac{e}{m}\right) B_i(k)$ 的電子自旋進動和內在與動量 k 相關的磁場 $B_i(k)$ 來描述，而內在磁場則是由能帶結構的自旋軌道耦合產生，用來描述導電帶電子進動的 Hamiltonian 項為

$$H(k) = \frac{1}{2} \hbar \sigma \cdot \Omega(k) \quad (2.23)$$

雖然需要從能帶結構才能得到微觀的 $\Omega(k)$ ，但藉由介紹內在的進動來探討反稱不對稱的效應，可以幫助我們了解自旋鬆弛。重要的是，目前對於實際 Larmor 進動的模擬還不完全。

不過有兩種情況可以討論：(i) $\tau_p \Omega_{av} \gtrsim 1$ 和(ii) $\tau_p \Omega_{av} \lesssim 1$

其中 Ω_{av} 是真實動量分布區域的 Larmor 頻率 $\Omega(k)$ 平均大小， τ_p 是動量散射時間

(i) $\tau_p \Omega_{av} \gtrsim 1$

表示動量散射時間 τ_p 長於自旋電子轉動一圈的平均時間大小 τ_s ，也就

是說單獨的電子自旋進動完一圈後，才會散射至另外一個動量能階，而自旋去相位速率 $\frac{1}{\tau_s}$ 會與 $\Omega(k)$ 的分佈存在一個關係式： $\frac{1}{\tau_s} \approx \Omega(k)$ ，這說明經過時間 τ_p ，當隨機的散射發生時，在導帶中自旋向上 $|\uparrow\rangle$ 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。

(ii) $\tau_p \Omega_{av} \lesssim 1$

這種情況最常被稱為 DP 機制，發生機率也較情況(i)高，我們可以從單一電子在波動磁場下的自旋進動來觀察，如圖 2-12，而磁場則是在不同時間 τ_p 下，隨機改變大小及方向，首先，在電子尚未受到其他磁場的影響前，電子在內在的磁場影響下以角度 $\delta\phi = \tau_p \Omega_{av}$ 並開始以不同的速度和方向旋轉，因此經過時間 t 之後，自旋相位會經過 $\frac{t}{\tau_p}$ 步的 random walk，而隨時間 t 改變的相位為

$$\phi(t) \approx \delta\phi \cdot \sqrt{\frac{t}{\tau_p}} \quad (2.24)$$

並定義自旋鬆弛時間 τ_s 為 $\phi(t) = 1$ 時，則可以得到運動窄化 (motion narrowing) 效應：

$$\frac{1}{\tau_s} = \Omega_{av}^2 \tau_p \quad (2.25)$$

由式(2.25)可以看出自旋鬆弛時間 τ_s 與動量散射時間 τ_p 成反比的關係，因此快速的動量散射將會抑制自旋鬆弛。

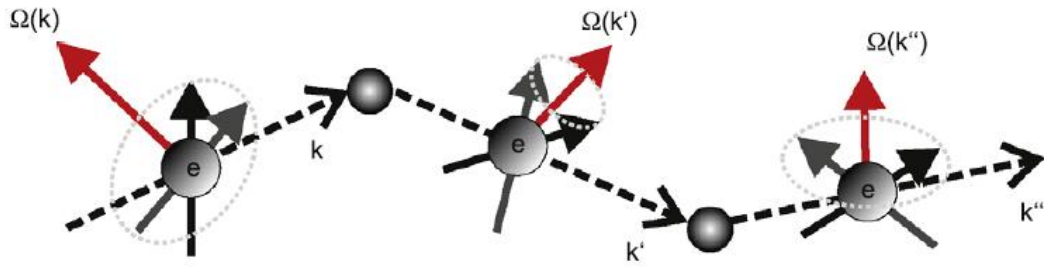


圖 2-12 DP 鬆弛機制

(a)三五族塊材(Bulk III-V)半導體

在三五族塊材半導體中，因為反稱不對稱，式(2.23)中的內在 Larmor 進動頻率向量為[2.14]

$$\Omega(k) = \alpha \hbar^2 (2m_c^3 E_g)^{-1/2} \kappa \quad (2.26)$$

其中 $\kappa = [k_x(k_y^2 - k_z^2), k_y(k_z^2 - k_x^2), k_z(k_x^2 - k_y^2)]$ ， m_c 為導電帶電子的質量， E_g 為能隙， α 是跟維度無關的自旋軌道相互作用力強度參數，GaAs 的話， $\alpha \approx 0.07$ [2.15]

最後，由 DP 首次計算的結果為

$$\frac{1}{\tau_{DP}(E_k)} = \frac{32}{105} \gamma_3^{-1} \tau_p(E_k) \alpha^2 \frac{E_k^3}{\hbar^2 E_g} \quad (2.27)$$

(b)二維三五族半導體系統

在二維三五族半導體系統中，像是量子井，有兩種 Hamiltonian 項可提供給 DP 自旋去相位： H_{BIA} (bulk inversion asymmetry) 和 H_{SIA} (structure inversion asymmetry)，這兩項根據量子井的方向預測了不同的自旋鬆弛時間 τ_s 相關性，如圖 2-13。

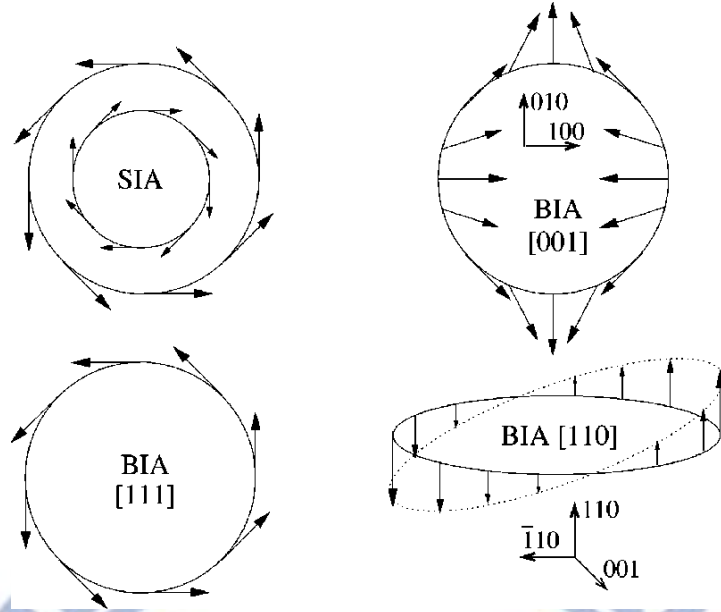


圖 2-13 SIA 和 BIA 的 Larmor 進動頻率向量

BIA 項來自於 Dresselhaus 自旋分裂，

$$\kappa_x = k_n^2 [2n_x(n_y k_y - n_z k_z) + k_x(n_y^2 - n_z^2)] \quad (2.28)$$

y 和 z 值依此類推，將式(2.28)帶回式(2.26)，可以得到

$$\frac{1}{\tau_{DP}(E_k)} = \frac{\alpha^2 \hbar^2 (k_n^2)^2}{2m_c^2 E_g} E_k \tau_p(E_k) \quad (2.29)$$

SIA 項來自於 Bychkov-Rashba 自旋分裂，其進動向量變成

$$\Omega(k) = 2\alpha_{BR}(k \times n) \quad (2.30)$$

α_{BR} 為與自旋軌道耦合相關的參數

將其帶回式(2.23)，得到鬆弛速率維

$$\frac{1}{\tau_{DP}(E_k)} = 4\alpha_{BR}^2 \frac{m_c}{\hbar^2} E_k \tau_p(E_k) \quad (2.31)$$

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

Bir 在 1975 年發現由於電洞的存在，電子和電洞可以直接進行交換作用，造成自旋鬆弛[2.16]，尤其是 p 型半導體，此交換作用的 Hamiltonian 項為

$$H_{BAP} = A\vec{S} \cdot \vec{j}\delta(\vec{r}) \quad (2.32)$$

其中 A 是在導帶與價帶狀態的交換積分(exchange integral)， \vec{S} 為電子自旋算符， \vec{j} 為角動量算符， r 為電子與電洞的相對距離。而自旋翻轉散射的機率取決於電洞的狀態，如簡併或非簡併，快或慢，為了定義 BAP 自旋鬆弛機制，可以臨界電洞濃度(critical hole concentration) N_C 的大小來判別半導體是否簡併。

對於非簡併的電洞系統($N_A < N_C$)，自旋鬆弛時間為

$$\frac{1}{\tau_{BAP}} = \frac{2}{\tau_0} N_A a_B^3 \frac{v_k}{v_B} \left[\frac{p}{N_A} |\psi(0)|^4 + \frac{5}{3} \frac{N_A - p}{N_A} \right] \quad (2.33)$$

其中

$a_B = \frac{\hbar^2 \epsilon}{e^2 m_c}$ 是激子波耳半徑， p 為自由電洞密度， $|\psi(0)|^2$ 是索末菲因子

(Sommerfeld factor)， $v_k = \left(\frac{2E_C}{m_e}\right)^{-1/2}$ 是導帶電子速度

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

$$\frac{\hbar}{\tau_0} = \left(\frac{3\pi}{64}\right) \frac{\Delta_{ex}^2}{E_B} \quad (2.34)$$

$E_B = \frac{\hbar^2}{2m_c a_B^2}$ 是 Bohr 激子能量，

對於簡併的電洞系統($N_A > N_C$)，且導帶電子速度 v_k 大於電洞的

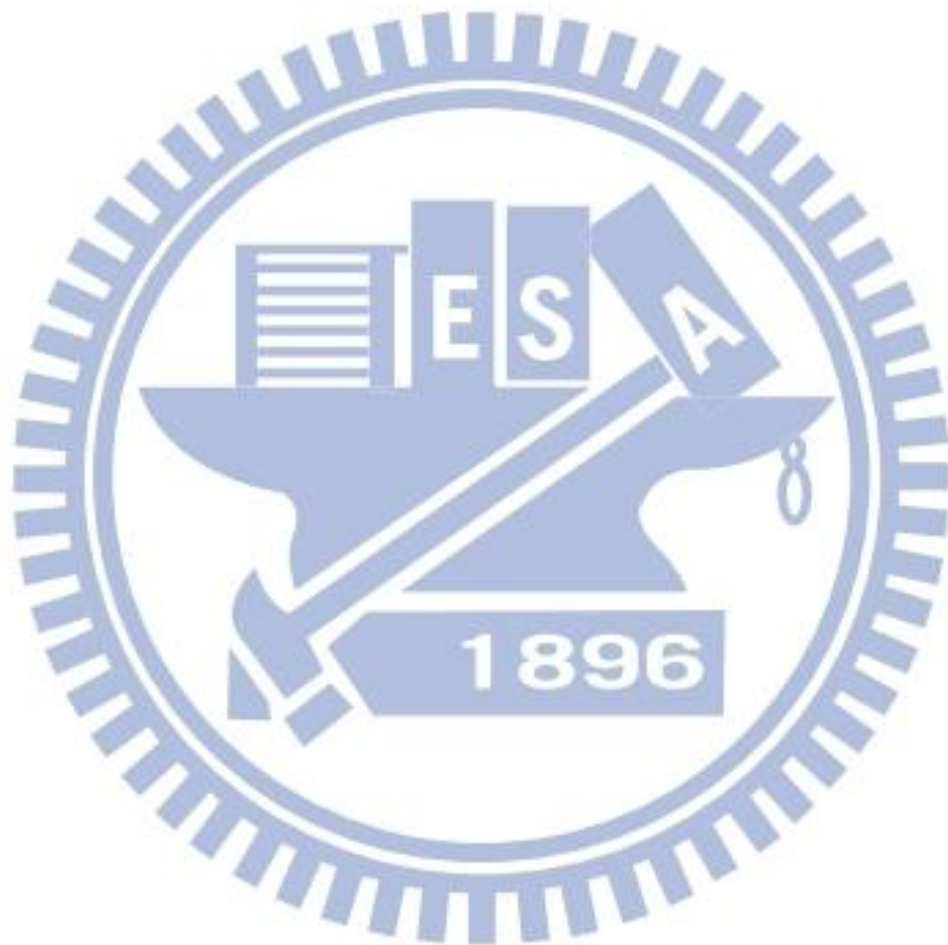
Fermi 速度，自旋鬆弛時間為

$$\frac{1}{\tau_{BAP}} = \frac{3}{\tau_0} p a_B^3 \frac{v_k k_B T}{v_B E_{Fh}} \quad (2.35)$$

E_{Fh} 是電洞的 Fermi 能量

$\frac{1}{\tau_{BAP}}$ 是由與溫度相關的 $|\psi(0)|^2$ 和 p 所主宰。對於非簡併的電洞系統的

系統來說， $\frac{1}{\tau_{BAP}} \propto N_A$ ，對於簡併的電洞系統的系統來說 $\frac{1}{\tau_{BAP}} \propto (N_A)^{1/3}$ 。

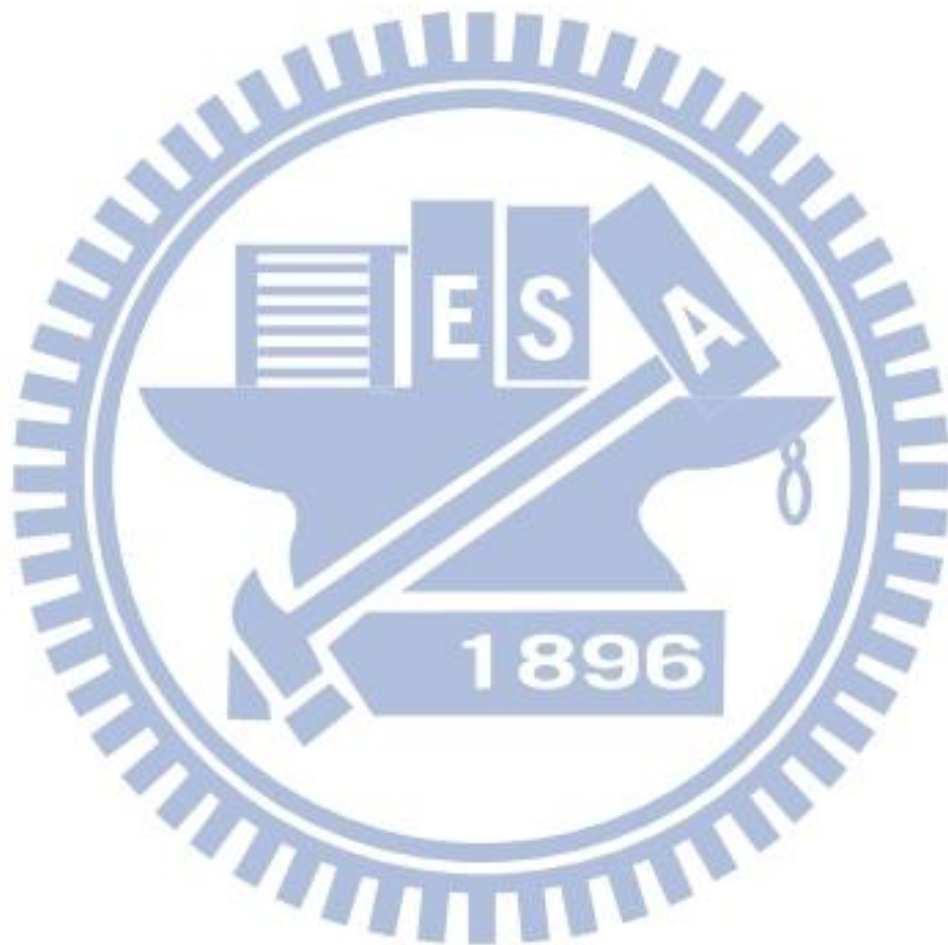


2-4 參考文獻

- [2.1] D. T. Pierce, R. J. Celotta, G.-C. Wang, W. N. Unertl, A. Galejs, C. E. Kuyatt, and S. R. Mielczarek, *Rev. Sci. Instrum.* 51, 478-499 (1980).
- [2.2] I. Zutic, J. Fabian, and S. Das Sarma, *Rev. Mod. Phys.* 76, 323 (2004).
- [2.3] 沈學礎著, 半導體光學性質, chap.2, 科學出版社 (1992)。
- [2.4] D.J. Hilton and C.L. Tang, *Phys. Rev. Lett.* 89, 146601(2002).
- [2.5] Bychkov, Yu. A., and E. I. Rashba, *J. Phys. C* 17, 6039–6045, 1984.
- [2.6] Bychkov, Yu. A., and E. I. Rashba, *JETP Lett.* 39, 78–81, 1984.
- [2.7] G. Dresselhaus, *Phys. Rev.* 100, 580 1955.
- [2.8] F. Meier, B.P. Zakharchenya (Eds.), *Optical Orientation*, North Holland, Amsterdam, 1984.
- [2.9] M.I. Dyakonov, V.Y. Kachorovskii, *Sov. Phys. - Semicond.* 20 (1986) 110.
- [2.10] F. Bloch, *Phys. Rev.* 70 (1946) 460.
- [2.11] Elliott, R. J., 1954, *Phys. Rev.* 96, 266–279.
- [2.12] Y. Yafet, 1963, in *Solid State Physics*, Vol. 14, edited by F. Seitz and D. Turnbull (Academic, New York), p. 2.
- [2.13] D'yakonov, M. I., and V. I. Perel', 1971e, *Sov. Phys. Solid State* 13, 3023–3026 (1971).
- [2.14] D'yakonov, M. I., and V. I. Perel', 1971d, *Sov. Phys. JETP* 33, 1053–1059 (1971).
- [2.15] Marushchak, V. A., M. N. Stepanova, and A. N. Titkov, *Sov. Phys. Solid State* 25, 2035–2038 (1983).
- [2.16] Bir, G. L., A. G. Aronov, and G. E. Pikus, 1975, *Sov. Phys. JETP* 42, 705–712 (1976).
- [2.17] T. Korn, 2010, *Physics Reports* 494 (2010) 415445.
- [2.18] 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。

[2.19]http://physik.kfunigraz.ac.at/~jaf/research/spintronics/spin_relaxation/relaxation.html



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，分子束磊晶可說是近年來在半導體製程技術當中最重要的一項發展，首先將待成長的晶片放置在一個超高真空 ($\sim 10^{-10}$ mmHg) 的腔體 (chamber) 中，所需成長的材料則放在腔體一端的小爐子當中。當爐溫升至一定高度時，爐中的材料會以原子束或分子束的形式蒸發出來，此時基板也被加熱至一適當的溫度。當分子束射至基板時，就會與基板表面的原子結合而形成磊晶。磊晶成長的速率完全由單位時間內射到基板表面的分子數目決定，這可以很容易的由裝置成長材料爐子的爐溫所控制，一般成長的速率約為一秒鐘成長 0.1 層至 3 層原子。由於速度慢，所以可以很精確的控制磊晶層的厚度。每個爐子的前端有一扇門，門的開關決定了磊晶層的起始點和終止點，控制這些門的開關順序就可以得到多層的磊晶結構。樣品選用個寬度為 10nm，如圖 3-2 和圖 3-3，並以未摻雜量子井(undoped QW)、不同濃度的 n 摻雜量子井 (n-doped QW) 及 p 摻雜量子井 (p-doped QW) 來做量測，最後再將結果與 GaAs 塊材做比較。

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 ($n_e = 1.0 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$)

二、 GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As 量子井：

(1) 樣品一：undoped GaAs QW

(2) 樣品二：p-doped GaAs QW ($n_h = 2.0 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$)

(3) 樣品二：p-doped GaAs QW ($n_h = 1.0 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$)

(4) 樣品三：n-doped GaAs QW ($n_e = 2.0 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$)

(5) 樣品四：n-doped GaAs QW ($n_e = 1.0 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$)



圖 3-1 量子井的結構示意圖

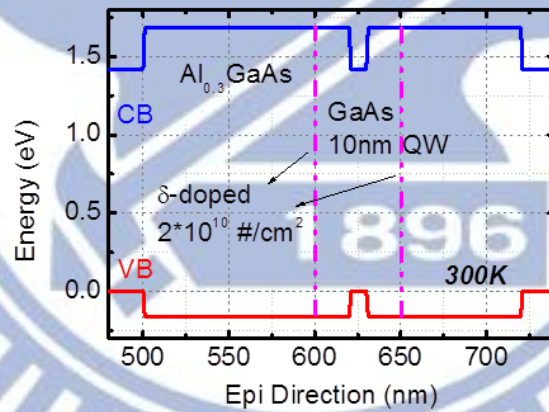


圖 3-2 量子井的能階示意圖

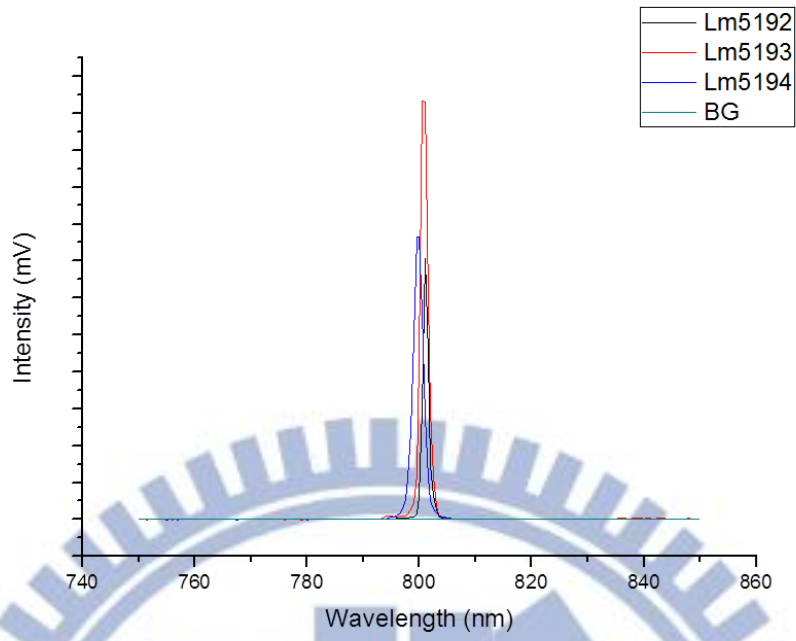


圖 3-3 LM5192-P, 93-undoped, 94 N 型 GaAs QW 低溫 PL

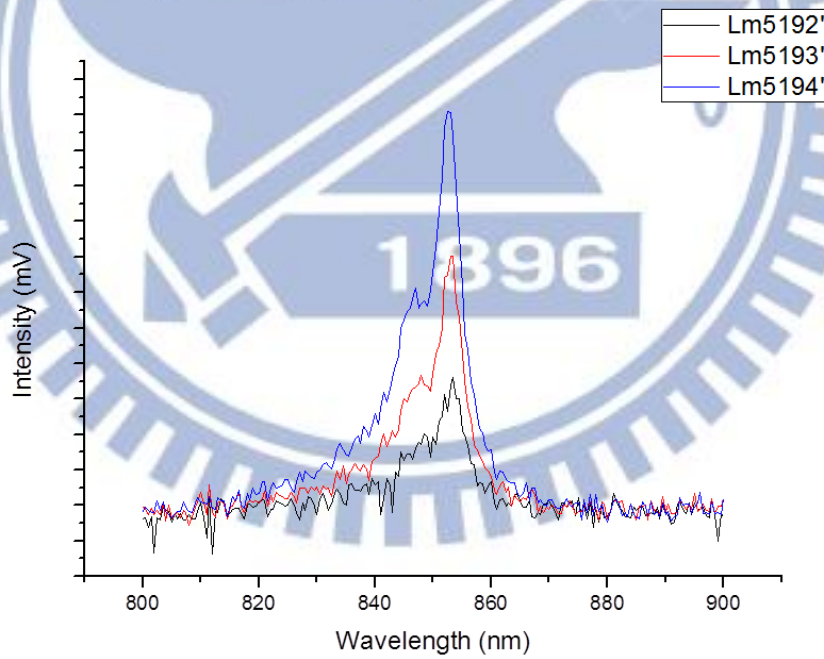


圖 3-4 LM5192-P, 93-undoped, 94 N 型 GaAs QW 室溫 PL

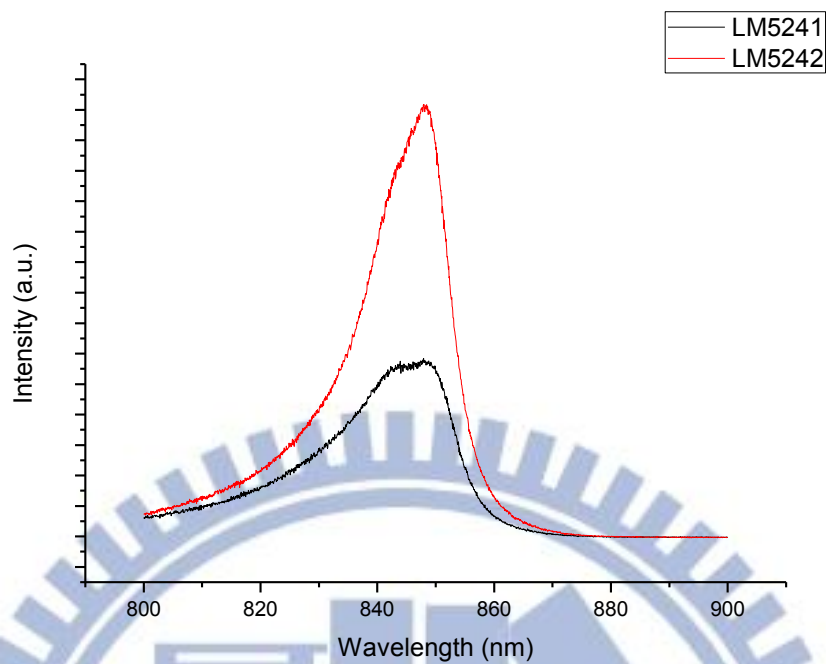


圖 3-5 LM5241-N, 42 P 型 GaAs QW 室溫 PL

圖 3-3 為樣品在低溫下的螢光光譜，圖 3-4 和圖 3-5 則為室溫下的螢光光譜，在室溫下可分別觀察到量子井中輕電洞及重電洞的放光，為了觀察單純的重電洞自旋鬆弛現象，在室溫下，LM5192、LM5193 和 LM5194 我們測量波長 853nm 的放光，LM5241 和 LM5242 則為波長 849nm 的放光

3-2 實驗設備

3-2-1 Up-conversion 系統架設

3-2-1-1 Up-conversion 光學原理

光學在物理學的發展中已有相當長久的歷史，起初許多科學家認為光在介質或晶體中行為是線性的 (linear optical media)，1960 年代雷射的發明，使我們有能力觀測高強度的光在介質中的行為。許多實驗使我們看清楚光在介質中的行為事實上卻是非線性的 (nonlinear behavior)。

然而線性或非線性是指光通過介質時的性質，而不是光本身的性質。非線性的行為是不可能真空中發生的。光與光的相互作用是憑藉著其介質而發生的。光改變了介質的性質，而介質又改變了另一道光或甚至改變了原來的那道光。

而 Up-conversion 則是利用非線性光學 (Nonlinear Optics) 的原理，間接地探測樣品所放射出來的螢光。1960 年代雷射發明之後，Franlen 等人利用將紅寶石雷射射入石英晶體之中，並發現除了原先波長的雷射有穿透以外，更有其他新的訊號產生，而此訊號剛好是原先雷射波長的一半，這也是第一次在實驗中發現倍頻的訊號，並且使得非線性晶體進行光譜轉換變成可能 [3.1]。

非線性光學中進行光的頻率轉換主要有倍頻 (harmonic

generation, HG)、和頻(sum frequency generation, SFG)和差頻(difference frequency generation, DFG)[3.2] [3.3]。而 Up-conversion 即利用非線性光學中的和頻原理，將兩道不同頻率的入射光，聚焦在非線性晶體上，而非線性晶體受到強光電場的作用，產生光學和頻。以下將針對合頻的原理做詳細的敘述。

將介電物質(dielectric materials)置入一個電場中，圖 3-6，此物質會被引誘出一個極化狀態(induced polarization)

$$P = \alpha E \quad (3.1)$$

其中 α 為極化率(polarizability)

又可以表示成

$$P = \epsilon_0 \chi E \quad (3.2)$$

ϵ_0 是電通率(electric permeability)， χ 是電敏感度(electric susceptibility)

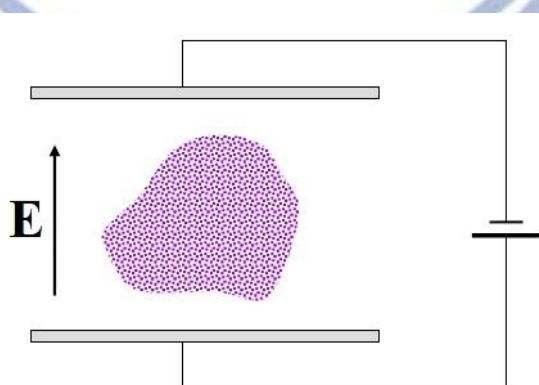


圖 3-6 介電物質於電場中

而物質的極化是由於電場改變了原子或是分子的電子分布，簡單來說就是物質中的正電荷(positive charge)與負電(negative charge)離開了原本的狀態，如圖 3-7。

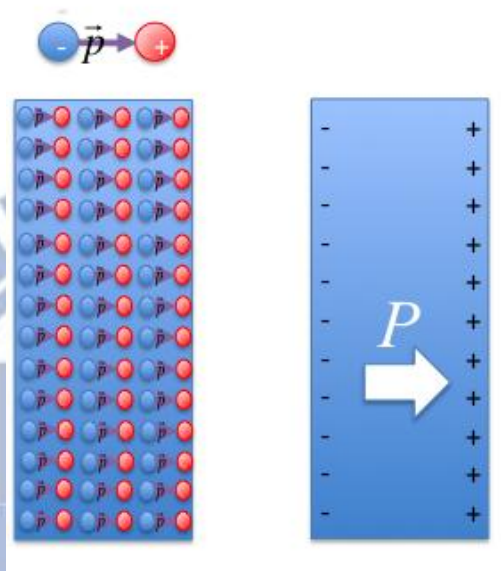


圖 3-7 物質產生的極化現象

考慮若電場隨著時間震盪如電磁波

$$E(t) = E_0 \cos \omega t \quad (3.3)$$

此時物質的極化也會隨著電場作震盪，則式(3.2)可表示成

$$P(t) = \epsilon_0 \chi E(t) = \epsilon_0 \chi (E_0 \cos \omega t) \quad (3.4)$$

而當物質在強電場作用下，產生的極化強度與入射光電場之間不再是線性關係，如圖 3-8，而是與二次、三次甚至更高次項有關，這種關係稱為非線性。

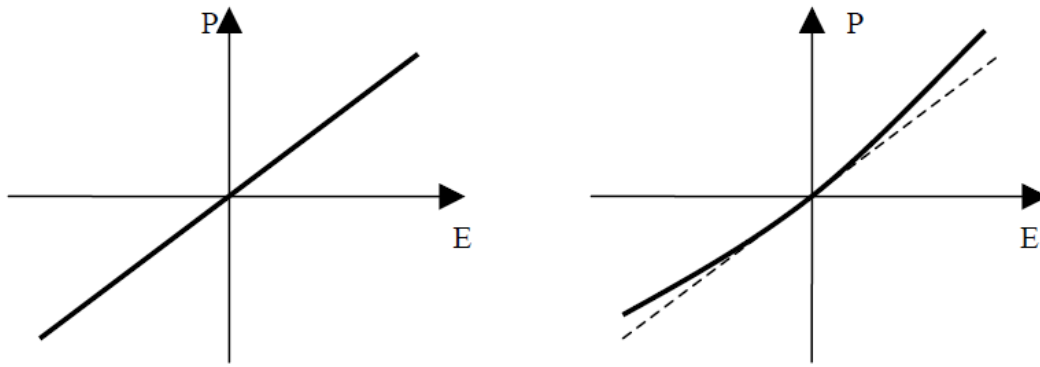


圖 3-8 極化強度與電場的線性與非線性關係

在強電場下為了符合非線性效應的結果，必須加入高階項

$$\begin{aligned}
 P(t) &= \epsilon_0(\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \dots) \\
 &= P^{(1)}(t) + P^{(2)}(t) + P^{(3)}(t) + \dots
 \end{aligned}
 \tag{3.5}$$

其中 $\chi^{(n)}$ 為第 n 階項磁化率(n^{th} order susceptibility)， $P^{(1)}(t)$ 為線性光學的極化強度，而 $P^{(2)}(t) + P^{(3)}(t) + \dots$ 則為非線性效應的修正項。

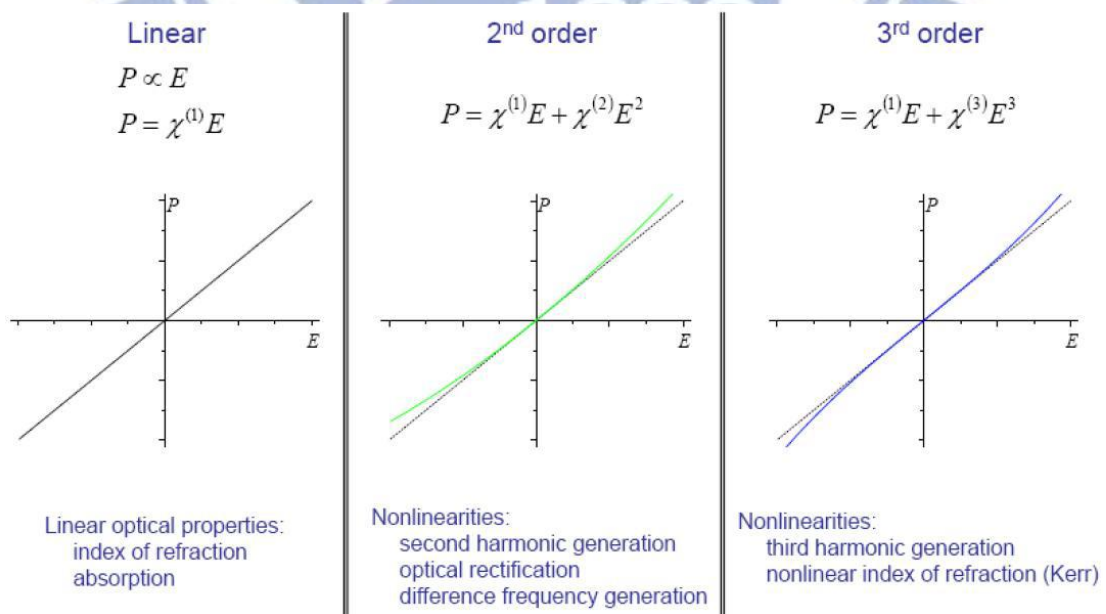


圖 3-9 考慮高階項時的非線性關係

在 Up-conversion 中是取得 Gate Pulse 與樣品螢光的和頻，因此只討論極化強度的二階項部分

$$P^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t) \quad (3.6)$$

首先，假設兩束不同頻率的電磁波(ω_1 、 ω_2)，以共線(collinear)的方式射入一個非線性晶體(nonlinear optics crystal)中，如圖 3-10。



圖 3-10 二階項的光學轉換

此時電場經過疊加(superpose)之後可寫成

$$E(t) = E_1 + E_2 = E_1^0 \cos \omega_1 t + E_2^0 \cos \omega_2 t \quad (3.7)$$

而二階項的極化強度則為

$$\begin{aligned} P^{(2)}(t) &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t) \quad (3.8) \\ &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} (E_1^0 \cos \omega_1 t + E_2^0 \cos \omega_2 t)^2 \\ &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} \left[E_1^{0^2} \cos^2 \omega_1 t + 2E_1^0 E_2^0 (\cos \omega_1 t)(\cos \omega_2 t) + E_2^{0^2} \cos^2 \omega_2 t \right] \\ &= \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(2)} \left[\begin{array}{l} (E_1^{0^2} + E_2^{0^2}) + \\ E_1^{0^2} \cos 2\omega_1 t + E_2^{0^2} \cos 2\omega_2 t + \\ 2E_1^0 E_2^0 \cos(\omega_1 + \omega_2) t + 2E_1^0 E_2^0 \cos(\omega_1 - \omega_2) t \end{array} \right] \end{aligned}$$

將方程式展開，從式(3.8)可以發現，二階項的極化強度會轉換出 4 種不同頻率的電磁波：

$$P_{2\omega_1}^{(2)}(t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^{0^2} \cos 2\omega_1 t \quad (3.9)$$

$$P_{2\omega_2}^{(2)}(t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_2^{0^2} \cos 2\omega_2 t \quad (3.10)$$

$$P_{\omega_1+\omega_2}^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^0 E_2^0 \cos(\omega_1 + \omega_2) t \quad (3.11)$$

$$P_{\omega_1-\omega_2}^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^0 E_2^0 \cos(\omega_1 - \omega_2) t \quad (3.12)$$

其中式(3.9)和式(3.10)分別是入射電磁波(ω_1 、 ω_2)的倍頻，式(3.11)是入射電磁波的和頻，而式(3.12)則是入射電磁波的差頻，如圖 3-11。

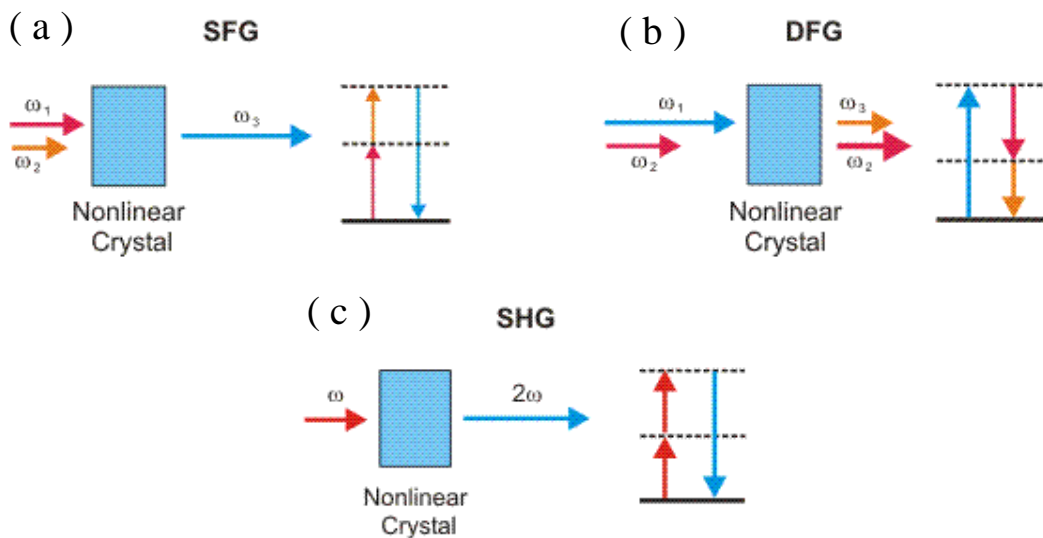


圖 3-11 二階項的轉換訊號(a)和頻 (b)差頻 (c)倍頻

除此之外，還得考慮電磁波是以非共線(non-collinear)的形式入射到非線性晶體中，並加入電磁波的波向量(\vec{k})後，如圖 3-12，將式(3.9)改寫成

$$P^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t)$$

$$\begin{aligned}
&= \varepsilon_0 \chi^{(2)} [E_1^0 \cos(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r}) + E_2^0 \cos(\omega_2 t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})]^2 \\
&= \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(2)} \left\{ (E_1^{02} + E_2^{02}) \right. \\
&\quad + E_1^{02} \cos 2(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r}) + E_2^{02} \cos 2(\omega_2 t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r}) \\
&\quad + 2E_1^0 E_2^0 \cos[(\omega_1 + \omega_2)t - (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r}] \\
&\quad \left. + 2E_1^0 E_2^0 \cos[(\omega_1 - \omega_2)t - (\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}] \right\}
\end{aligned} \tag{3.13}$$

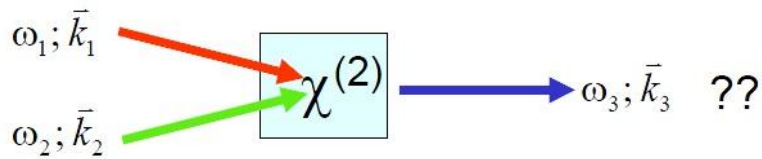


圖 3-12 非共線二階項的光學轉換

為使和頻可以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)

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 = 0 \tag{3.14}$$

但必須在物質對於任何波長傳播時，傳播速度都一樣快的情況底下才能成立，而任何物質對於不同波長傳播時不可能一樣快，圖 3-13。

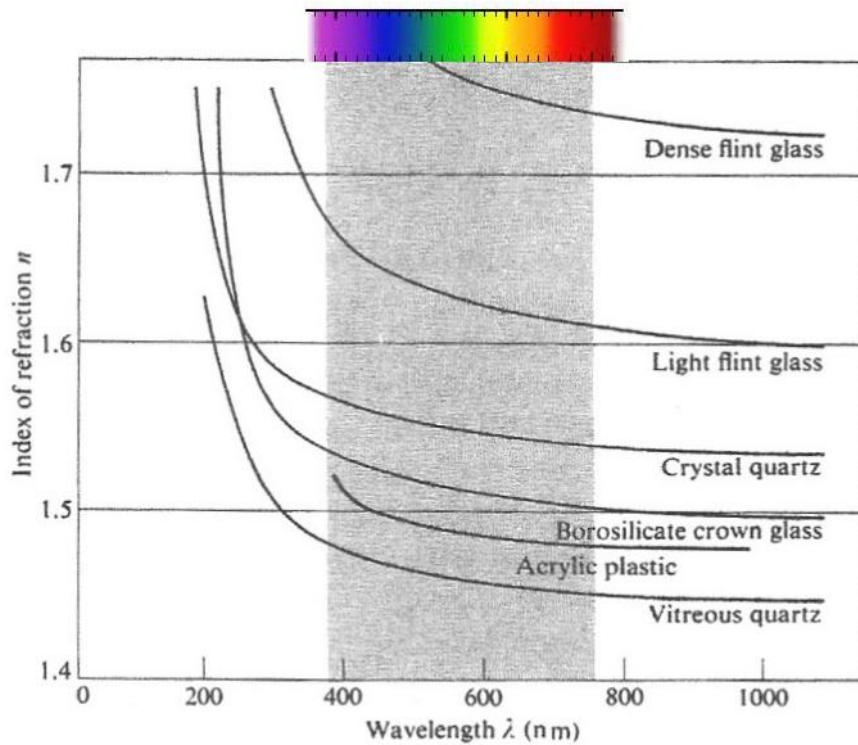


圖 3-13 物質在不同波長時，折射率的改變

當兩束相同頻率的電磁波 ω_1 非共線射入非線性晶體中，電磁波在物質內進行倍頻轉換時

$$\Delta k = 2k(\omega_1) - k(2\omega_1) \quad (3.15)$$

$$= 2 \frac{\omega \cdot n(\omega_1)}{c} - \frac{2\omega \cdot n(2\omega_1)}{c}$$

$$= \frac{2\omega}{c} [n(\omega_1) - n(2\omega_1)]$$

$$\because n(\omega_1) \neq n(2\omega_1) \therefore \Delta k \neq 0 \quad (3.16)$$

其中 $k = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{\omega \cdot n(\omega)}{c}$ ， n 為折射率(refraction index)

因此，由於轉換後的倍頻電磁波相位不匹配(Phase Mismatch)，如圖 3-14，最終則破壞整個轉換效果，得到的倍頻訊號會非常微弱。

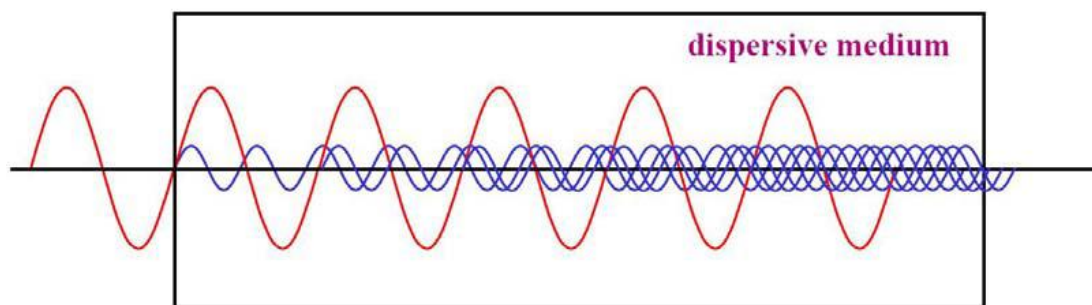


圖 3-14 相位不匹配

為了解決相位不匹配所造成的訊號問題，必須找到一個方法可以達到 $n(\omega) = n(2\omega)$ 的條件，而雙折射(Birefringent)特性正好可以符合這樣的需求。

而單光軸雙折射晶體(uniaxial birefringent crystals)是最常被使用於頻率轉換的非線性晶體。單光軸雙折射晶體由於晶格結構的關係，存在一個獨特的對稱軸，稱為光學軸(optic axis, OA)。當電磁波進入這晶體內時，若電磁波的電場方向垂直 OA，則此電磁波便稱為 ordinary ray (O-ray)，且其折射率 n_o 不會隨著入射方向而改變；若平行 OA，則稱為 extraordinary ray (E-ray)，但 E-ray 的折射率 n_e 會隨著入射方向不同而有所變化，如圖 3-15。

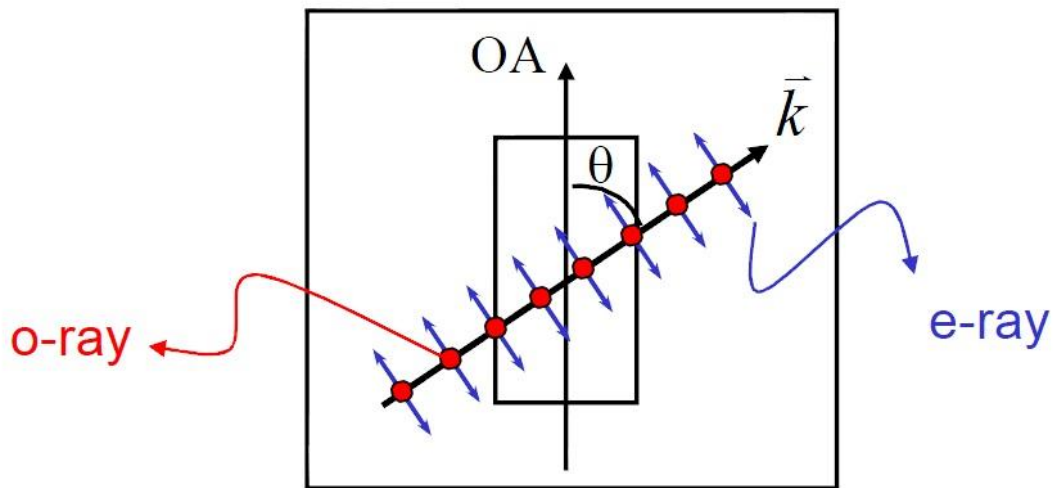


圖 3-15 光學軸

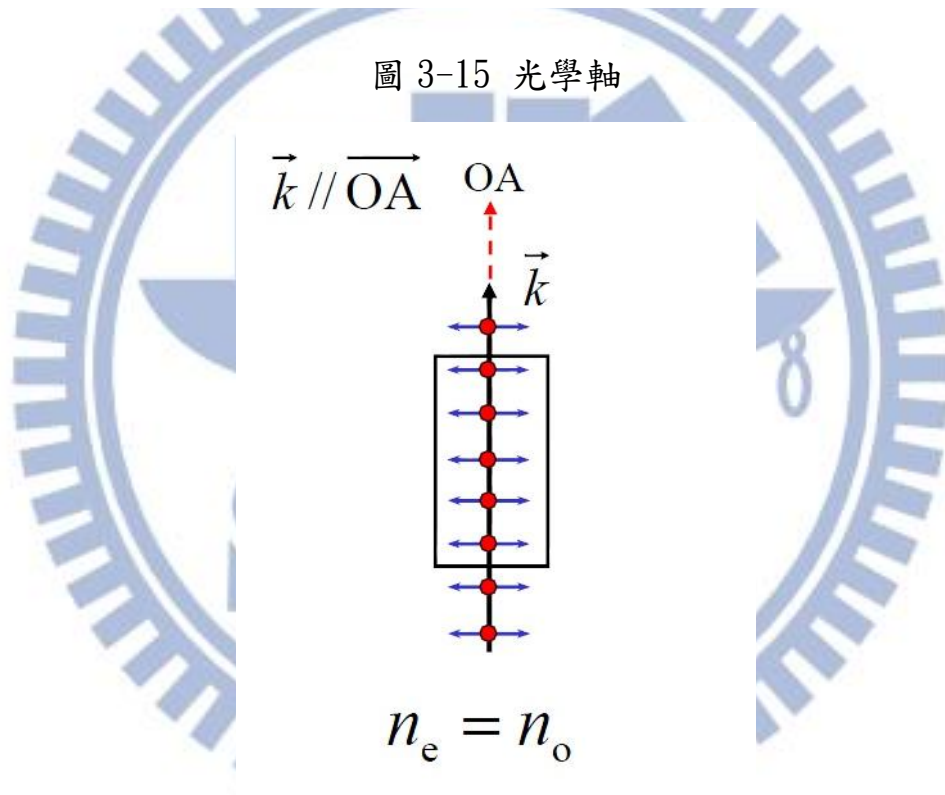


圖 3-16 當波行進方向平行光學軸

由波的行進方向(\vec{k})與 OA 所夾的角度(θ), 如圖 3-15, 再加上當波行進方向平行光學軸時, 可以得知 $n_e = n_o$, 我們可以推導出[3.4]

$$\frac{1}{n_e^2(0^\circ)} = \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2(90^\circ)} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} \quad (3.17)$$

因此可以藉由改變入射的角度(θ)，來調控 $n_e^2(\theta)$ ，以滿足相位匹配的條件。

而當 $n_e < n_o$ ，稱為負型雙折射晶體；當 $n_e > n_o$ ，稱為正型雙折射晶體，如圖 3-17，其中又以負型雙折射晶體較為廣泛使用。

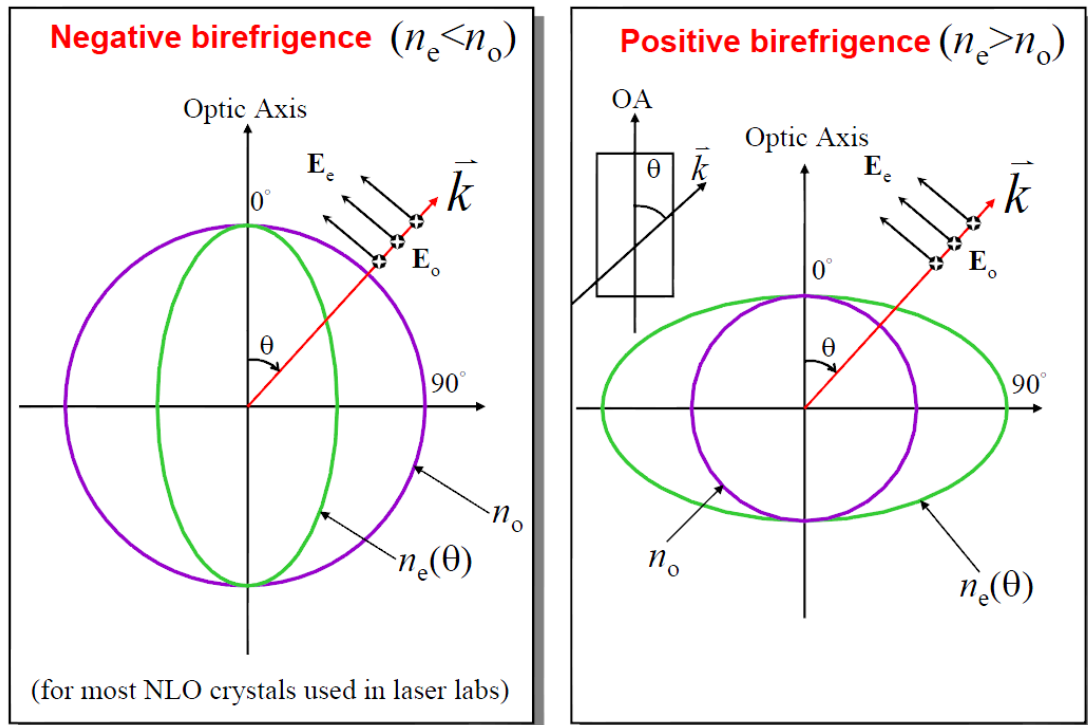


圖 3-17 正型與負型雙折射晶體

而相位匹配主要有兩種型式，兩個入射電磁波其偏振方向相互平行時，稱為型式一(Type I)，而輸出和頻訊號其偏振方向會與入射電磁波垂直；當兩個入射電磁波其偏振方向相互垂直時，稱為型式二(Type II)，而輸出和頻訊號的偏振方向則會與頻率較小的電磁波同向。

以型態一(Type I)的相位匹配為例，若是正型晶體，入射 E-ray 方向

的電磁波(ω)，則會在 O-ray 方向產生倍頻電磁波(2ω)；若是負型晶體入射 O-ray 方向的電磁波(ω)，則會在 E-ray 方向產生 SHG(2ω)。

圖 3-18、圖 3-19 將型態一與型態二在進行和頻轉換時的相位匹配情形歸納出來，並以負型晶體為例。

Type I Phase Matching

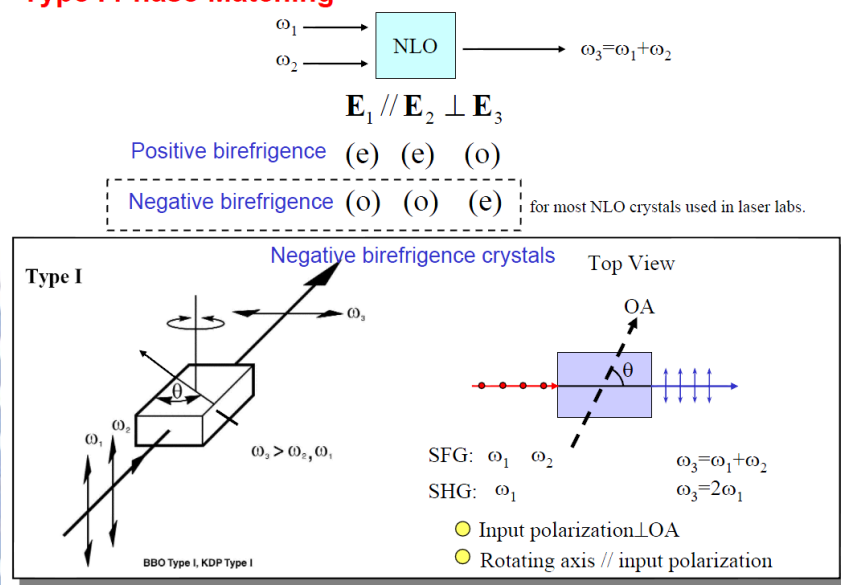


圖 3-18 Type I 負型晶體頻率轉換示意圖

Type II Phase Matching

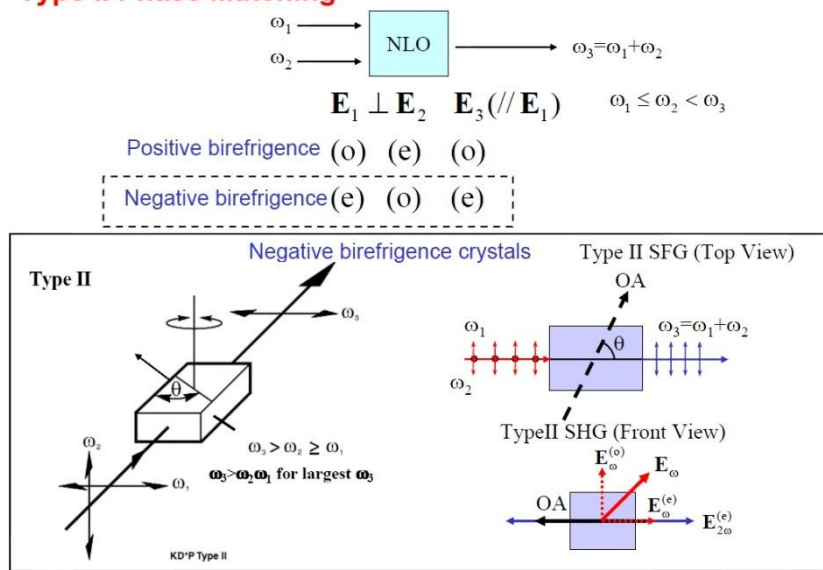


圖 3-19 Type II 負型晶體頻率轉換示意圖

了解和頻原理以及相位匹配所需要的條件以後，經過調整(θ)來達到相位匹配的條件時，我們便可以順利地得到最佳的和頻轉換訊號，如圖 3-20。

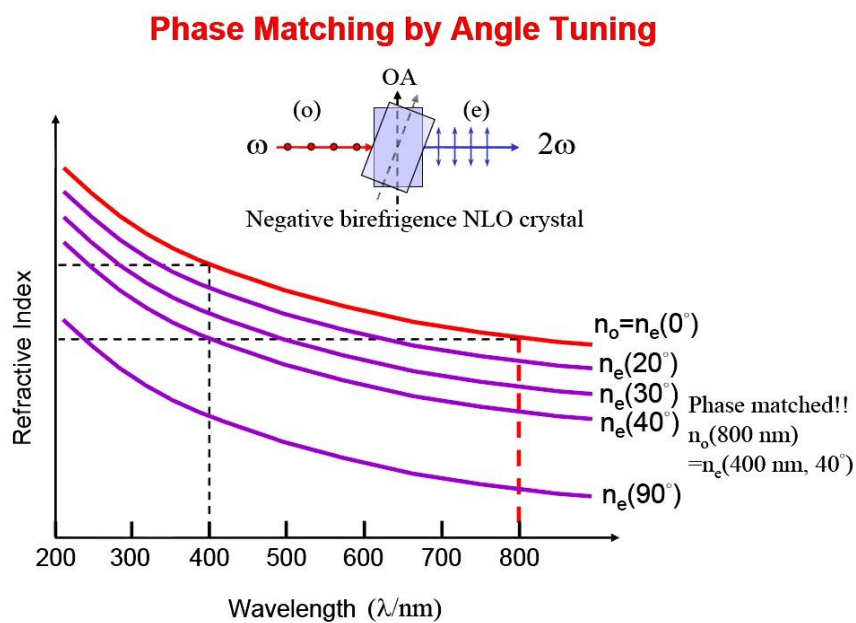


圖 3-20 藉由調整角度達到相位匹配

3-2-1-2 Up-conversion 光學系統架設

時間解析光譜整套系統是由俄國 CDP 公司所生產的 FOG 100 系統，如圖 3-21，其主要分為 Up-conversion 光學組件、CDP2022 單光儀以及 PMT 偵測器。接下來介紹實驗的光路架設，如圖 3-22，首先將雷射光源導入 FOG 100 系統內，系統包含兩個雷射入口，並選擇光徑較長的入口 (IN1)，如此可以較輕易的校準入射光路。當校正完入射光路後，接著利用分光鏡 (beam splitter, BS)，將雷射分成激發脈衝 (pump pulse) 與閘道脈衝 (gate pulse) 兩道光路，第一道激發脈衝先經由 lens (L1) 聚焦後再打到樣品上，而樣品的 PL 則由收光鏡 (AC) 收光，最後再藉著 lens (L2) 聚焦至非線性晶體內；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最小一步 (Step) 光程差是 6.25fs，並可藉由調整 M2、M3，我們可以確保閘道脈衝不會因為光路拉長而偏離原本的路徑，最後閘道脈衝同樣經由 L2 聚焦至非線性晶體內並且與 PL 互相重合。

實驗中所使用的是負型非線性晶體 Type II BBO，在閘道脈衝與 PL 的波段範圍下，Type II BBO 擁有較佳的轉換效率，因此只要調整 BBO 的角度達到相位匹配，如圖 3-23，我們便能很輕易的得到 SFG 轉換訊號。

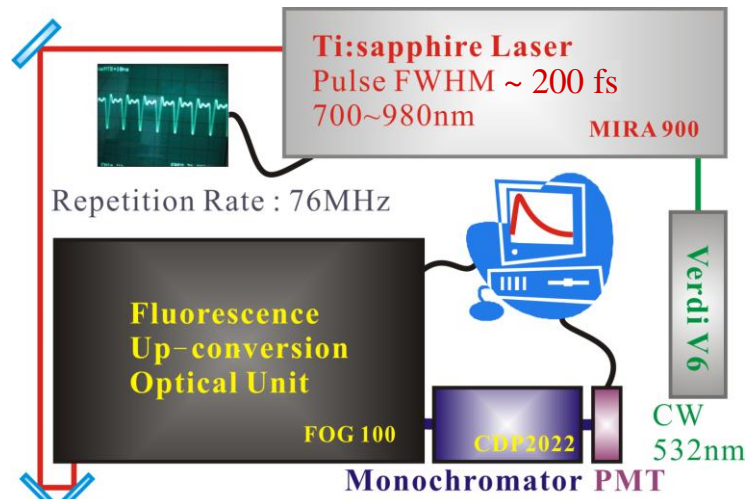


圖 3-21 整套 TRPL 系統的架設圖

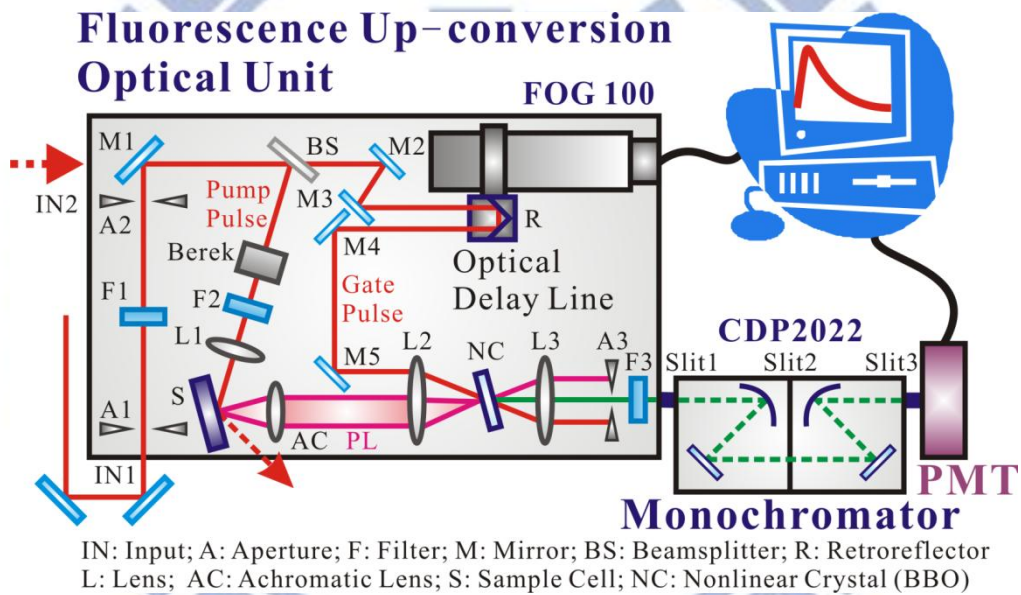


圖 3-22 Up-conversion 光學組件的架設圖

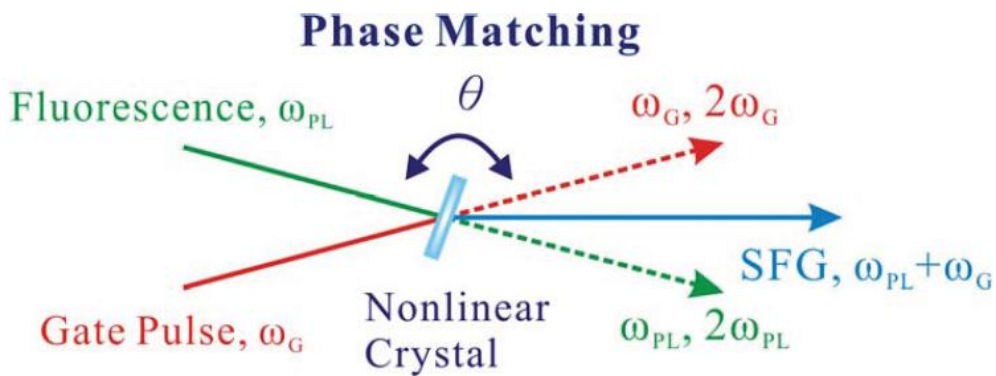


圖 3-23 和頻訊號輸出

3-3 自旋鬆弛時間解析系統架設

3-3-1 偏極化的產生

首先，光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。而圓偏光鏡片是由線偏光鏡和一個四分之一波長的波片 (wave plate) 所組成的，這片波片基本上是用特殊的雙折射材質所製作的，當光線射入後，光線會有兩個不同方向的折射。當一個線偏振光射入時，他的振動會被分解成兩個方向的振動：其中一個是光軸的方向、稱為快軸光，另一個則是和光軸垂直的方向、稱為慢軸光。

當射入四分之一波片的線偏振光和光軸平行或垂直時，會因為另一個方向的振幅為零，而維持原來的線偏振光的。而當線偏振光和光軸夾角是 45 度時，分解出來兩個方向的振幅會相等，就會形成所謂的圓偏振光；但是如果是其他角度的話，則會因為分解出來兩個方向的振幅不同，而變成橢圓偏光，如圖 3-24。

波片除了會將光的振動分為兩個方向外，在這兩個方向震動會因為波片厚度的不同，有不同的相位差；而用在圓偏光鏡片上的四分之一波片，就是會產生 $1/4$ 的相位差。也因為這四分之一的相位差，所以在快速軸與慢速軸兩個方向的波合成後，就會產生出一個振動方

向會旋轉的波。

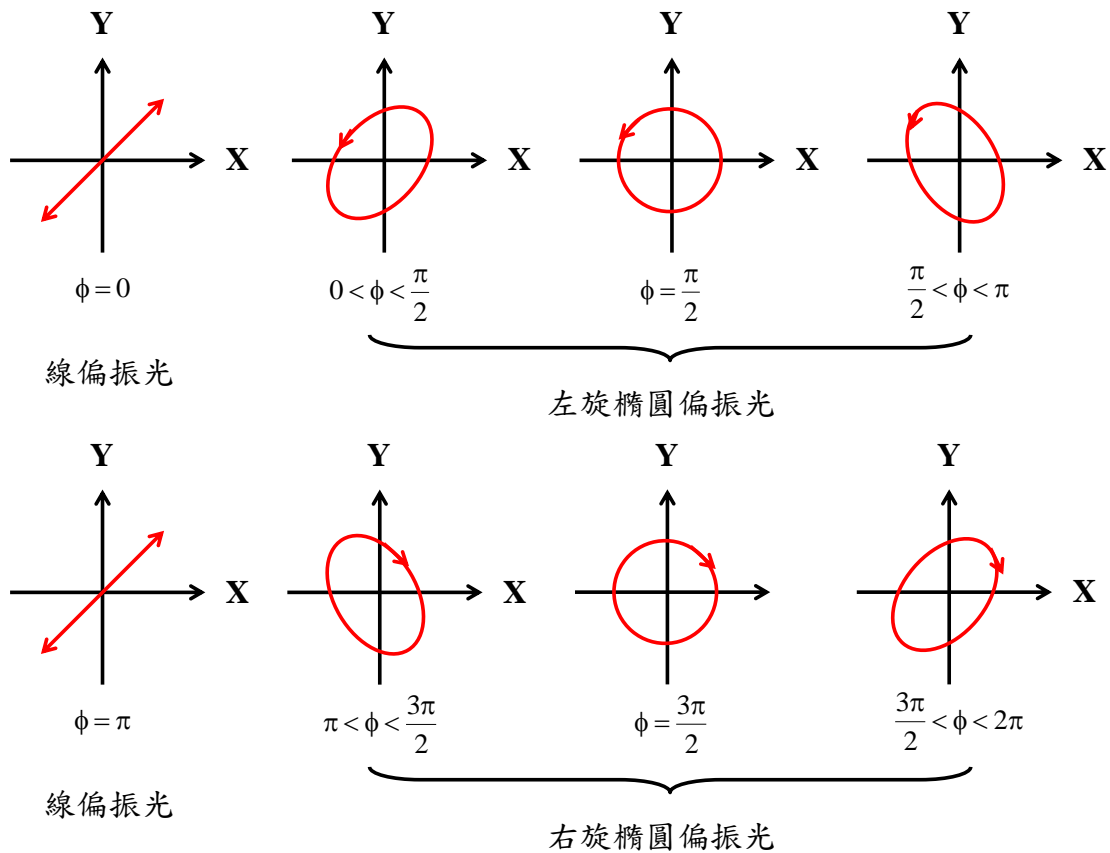


圖 3-24 不同型式的偏振光

如圖 3-25 所示，光是沿著粗黑線往左邊前進，而紅色的波和綠色的波則就是被分解出來的兩個互相垂直的波動，可以明顯看出綠色的波比紅色的波快了 $1/4$ 個波長，在這樣的情況下，紅色的波和綠色的波就會合成、變成圖中藍色虛線的波，而實線的部分是代表震動方向，這樣的情形下，就相當於最後光的振動方向，一邊前進一邊以淺藍色箭頭的方向在旋轉。此外，可參考表 3-1，得到不同的偏振光。

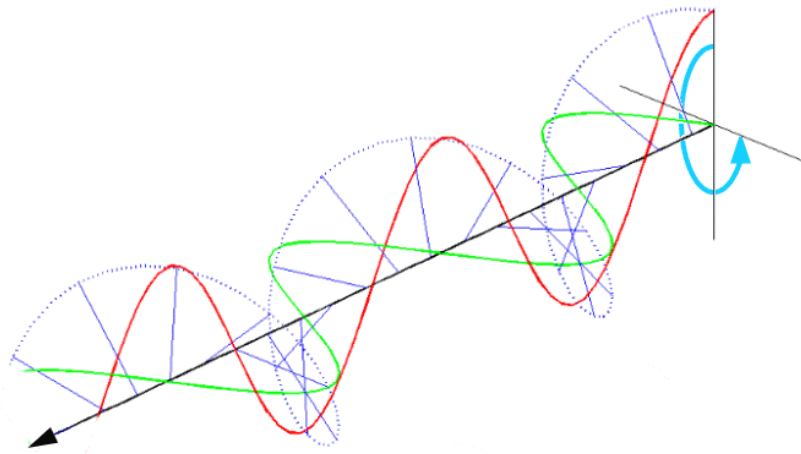


圖 3-25 圓偏振光的示意圖

表 3-1 光的偏振態轉換

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

3-3-2 自旋鬆弛時間解析系統架設

自旋極化鬆弛時間解析系統是以 Up-conversion 系統為基本架構，在激發脈衝光路上分別架設兩組 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 3-26。

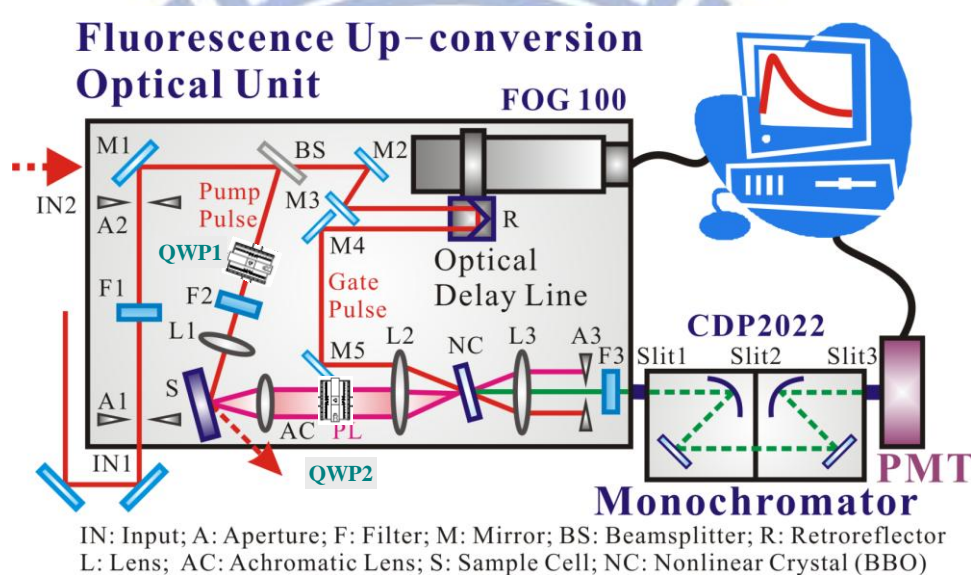


圖 3-26 Up-conversion 加裝偏光鏡的架設圖

系統的預設雷射光為線偏振光，因此使用 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，之後利用 QWP2 分別將左、右旋光轉換成與原先系統中相同的線偏振光，並測量時間解析光譜，最後再經由電腦換算即可得到自旋極化解析光譜。

3-4 參考文獻

[3.1] B. Valeu, Wiley-VCH, New York (2002)

[3.2] Robert W. Boyd, Academic Press (1992)

[3.3] P. Y. Cheng, Laser Chemistry, (2006)

[3.4] Nonlinear Optical Crystals. AOTK, Inc.

[3.5] 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 年。

[3.6] 林新欣，「三五族半導體材料的載子與自旋動力學」，碩士論文，2011 年。

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

[3.8] http://viml.nchc.org.tw/blog/paper_info.php?CLASS_ID=1&SUB_ID=1&PAPER_ID=146

[3.9] 李建平，科學月刊，1990 年 2 月 242 期

第四章 實驗結果與討論

我們將藉由電子與電洞的自旋鬆弛時間和極化率，來釐清二維量子井和三維 GaAs 間，量子井中重電洞與輕電洞的能階分離，以及自旋軌道耦合對兩者造成的影響，另外藉由摻雜電子或電洞及不同的光激發強度，來釐清三種自旋鬆弛機制：(1) EY 機制；(2) DP 機制；(3) BAP 機制，在不同的實驗條件下所扮演的角色。

4-1 Undoped GaAs 的自旋動力學

首先我們以 1.59eV 的 σ^+ 的光激發，並將測得的 $I^+(t)$ 及 $I^-(t)$ 代入自旋極化率公式，如圖 4-1

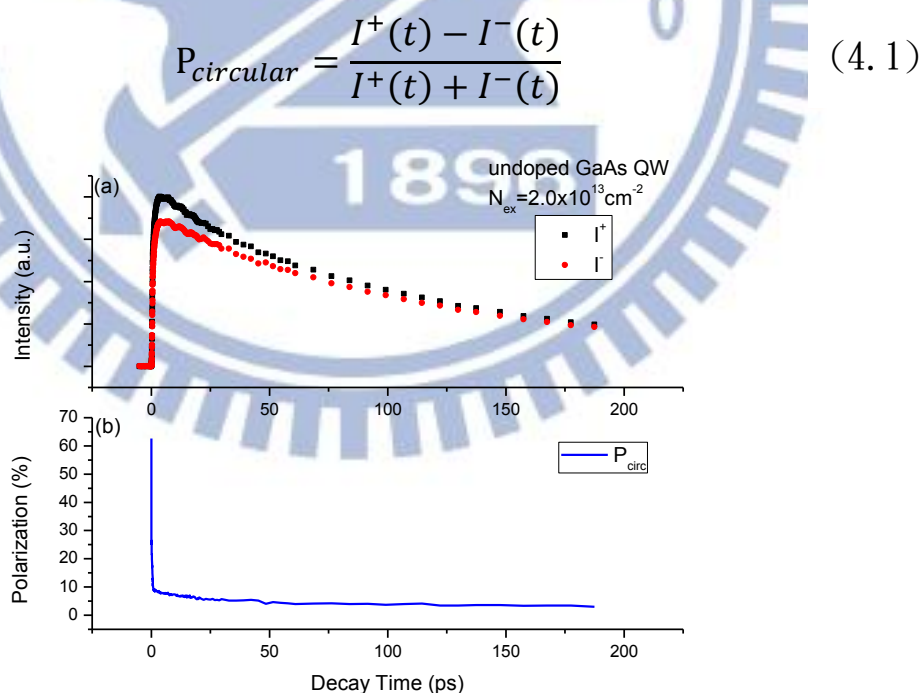


圖 4-1 (a)GaAs QW 自旋時間解析光譜 (b)自旋極化率

在時間零點的時候，測得的 PL σ^+ 光與 σ^- 光會開始分裂，此時可以得到最大的自旋極化率，接著隨著時間開始自旋鬆弛，由圖 4-2 所示，我們可以將自旋鬆弛分為兩個階段，(1) 短程 ($t < 0.75\text{ps}$)：從起始自旋極化率 P_0 迅速下降至 10%；長程 ($t > 0.75\text{ps}$)：自旋鬆弛速率逐漸緩慢，最後 $I^+(t)$ 和 $I^-(t)$ 逐漸重合，自旋極化率趨近於零。

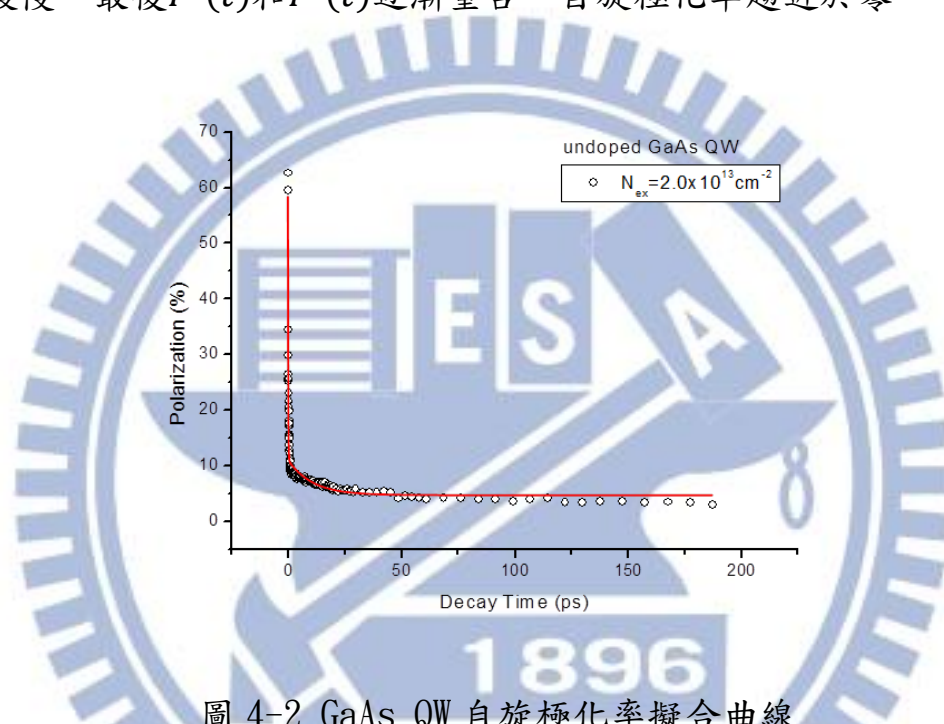


圖 4-2 GaAs QW 自旋極化率擬合曲線

接著利用 $P(t) = A_1 e^{-t/\tau_1} + A_2 e^{-t/\tau_2}$ 來擬合圖 4-1(b) 的結果，可以得到兩段自旋極化的生命期 (lifetime) τ_1 和 τ_2 ，分別為 0.125ps 和 10.623ps，其中短程的自旋鬆弛時間 τ_1 主要是由於電洞鬆弛機制所造成，大約只有數百 fs；而長程自旋鬆弛時間 τ_2 則為電子自旋鬆弛時間。

4-1-1 不同激發密度之自旋極化率

如圖 4-3 所示，量子井由於重電洞和輕電洞的能階分裂，相較於

塊材 50%的起始極化率，如圖 4-4，起始極化率理論上可以達到 100%，但受到激發密度造成的輕重電洞混合的影響，並不容易達到 100%。

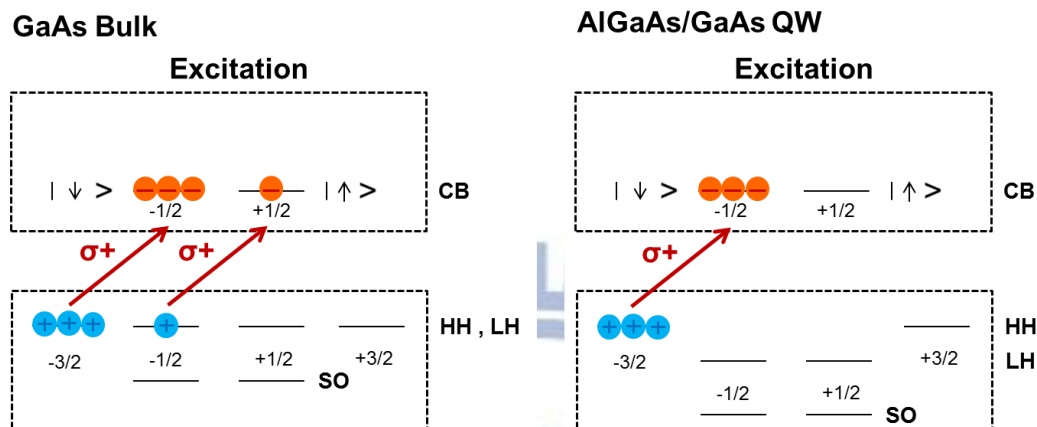


圖 4-3 (a)GaAs bulk 光激發過程(b)GaAs QW 光激發過程

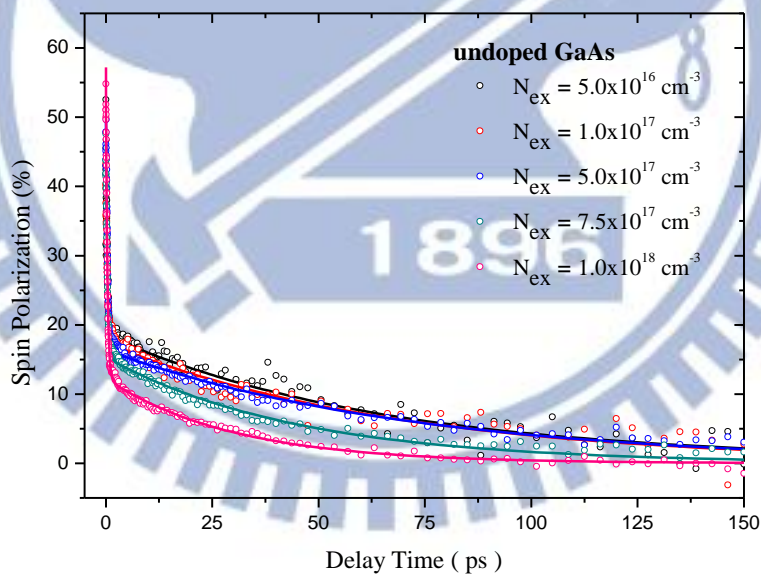


圖 4-4 GaAs bulk 不同激發密度下，自旋極化率的擬合曲線

如圖 4-5 所示，隨著激發密度增加，起始極化率逐漸下降，這是因為輕電洞的能帶間躍遷矩陣含有 z 軸的分量[4.1]

$$d_{1/2}^{\downarrow} = \frac{-1}{\sqrt{6}d_{cv}(\vec{e}_x + i\vec{e}_y)} + \sqrt{\frac{2}{3}}\vec{e}_z \quad (4.2)$$

$$d_{-1/2}^{\uparrow} = \frac{1}{\sqrt{6}d_{cv}(\vec{e}_x - i\vec{e}_y)} + \sqrt{\frac{2}{3}}\vec{e}_z \quad (4.3)$$

而重電洞則不含 z 軸分量

$$d_{3/2}^{\uparrow} = \frac{-1}{\sqrt{2}d_{cv}(\vec{e}_x + i\vec{e}_y)} \quad (4.4)$$

$$d_{-3/2}^{\downarrow} = \frac{1}{\sqrt{2}d_{cv}(\vec{e}_x - i\vec{e}_y)} \quad (4.5)$$

因此當激發密度增加時，輕電洞能階上升，導致重電洞和輕電洞嚴重混合[4.2]，造成自旋極化率的下降。

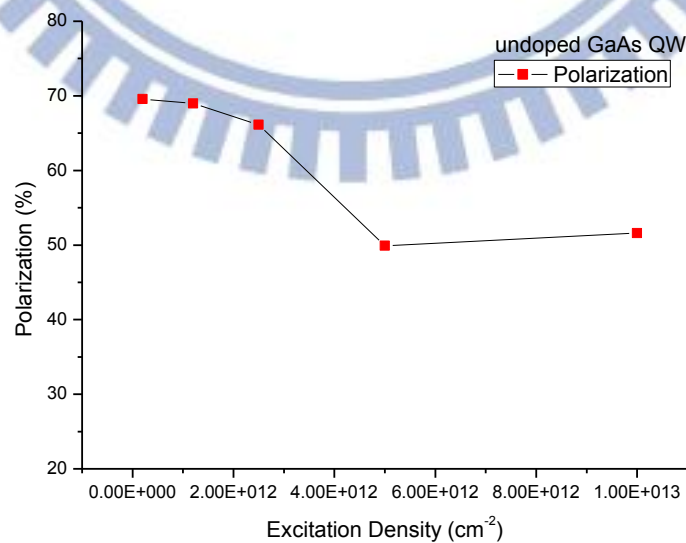


圖 4-5 undoped GaAs QW 不同激發密度下，起始極化率的變化

表 4-1 undoped GaAs QW 不同激發密度下的起始極化率

$N_{ex}(cm^{-2})$	1.0×10^{13}	5.0×10^{12}	2.5×10^{12}	1.2×10^{12}	6.0×10^{11}	2.0×10^{11}
$P(0)(\%)$	51.5859	49.9094	66.1158	68.9592	62.7598	69.5788

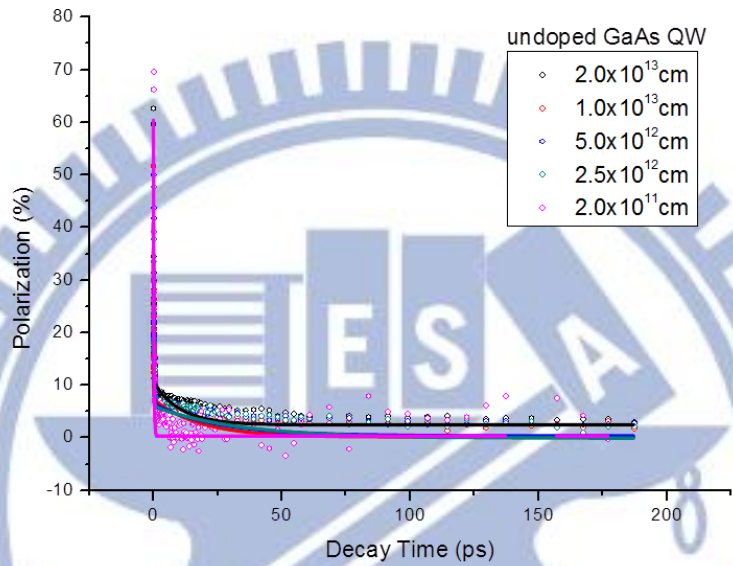


圖 4-6 undoped GaAs QW 不同激發密度下，自旋極化率的擬合曲線

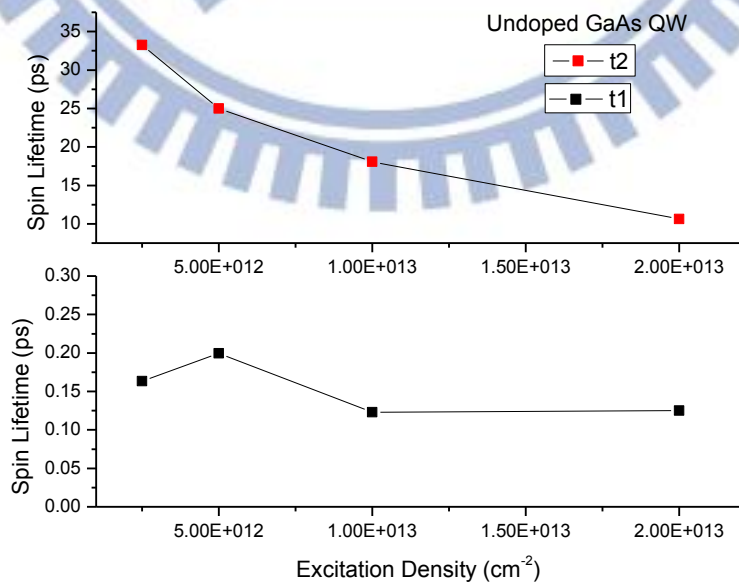


圖 4-7 undoped GaAs QW 在不同激發密度的自旋鬆弛時間

4-1-2 不同激發密度之自旋鬆弛時間

電子自旋鬆弛時間 τ_2 隨著激發密度增加，呈現遞減的變化，如圖 4-7，主要是受到非均勻擴展 (inhomogeneous broadening) 的影響 $\langle |\Omega_k|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle \propto N_{ex}^2$ [4.3]，由於激發密度的增加，越多的不均勻自旋電子彼此以不同 larmor 頻率進動，導致自旋耦合效應提升，造成自旋快速地鬆弛。

Undoped GaAs QW 受到電洞鬆弛的影響較 GaAs bulk 強烈，如圖 4-4 和 4-6，由圖 4-8(a) 所示，當光激發密度 N_{ex} 非常小的時候，可以看到 $I^+(t)$ 和 $I^-(t)$ 在接近 7ps 就已經重合，自旋極化率趨近於零，如圖 4-9，表示電子的自旋鬆弛機制已經消失，幾乎可以排除自旋電子的影響，因此自旋鬆弛機制將由電洞所主宰，時間只有約幾百 fs，電洞鬆弛機制將在章節 4-2-3 和 N 型的量子井一起探討。

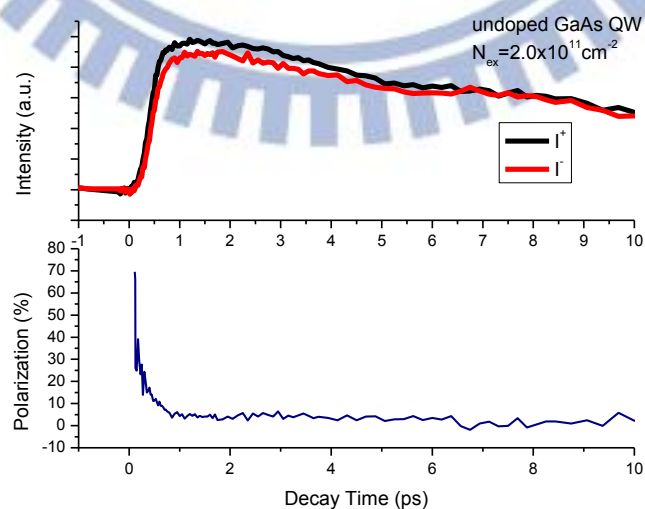


圖 4-8 (a) GaAs QW 低激發密度自旋時間解析光譜 (b) 自旋極化率

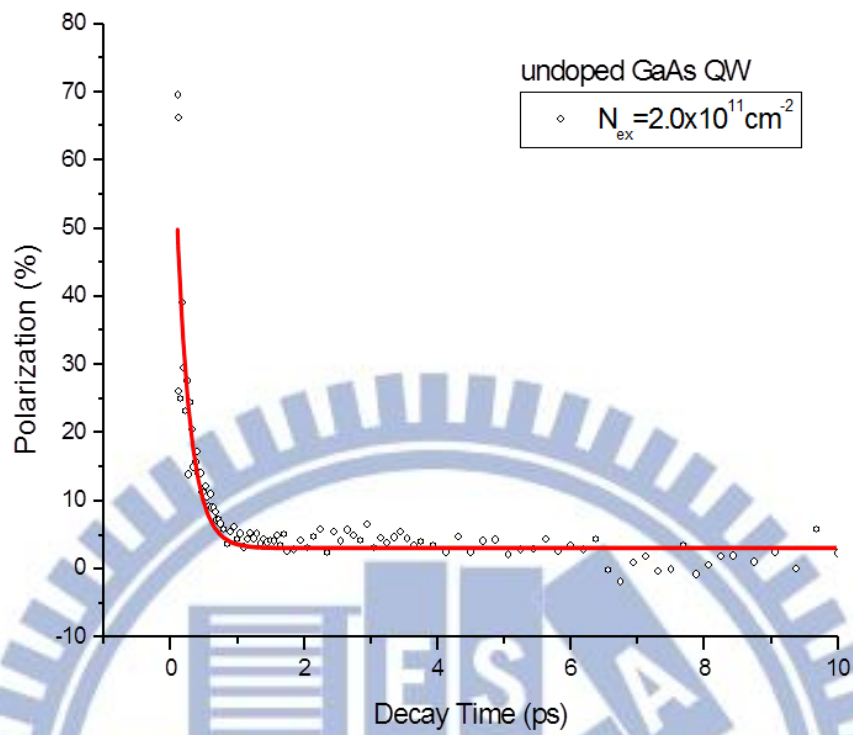


圖 4-9 undoped GaAs QW 低激發密度的自旋極化率擬合曲線

4-2 N 型 GaAs 的自旋動力學

對於 N 型半導體而言，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。

4-2-1 變激發密度及不同摻雜濃度之自旋極化率

我們選用摻雜濃度 $n_e = 2.0 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$ 與 $n_e = 1.0 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ 的 N 型 GaAs 量子井，如圖 4-10、圖 4-11，並以 1.59eV 的 σ^+ 的光在不同激發密度下激發，所得到的自旋極化率的擬合曲線。

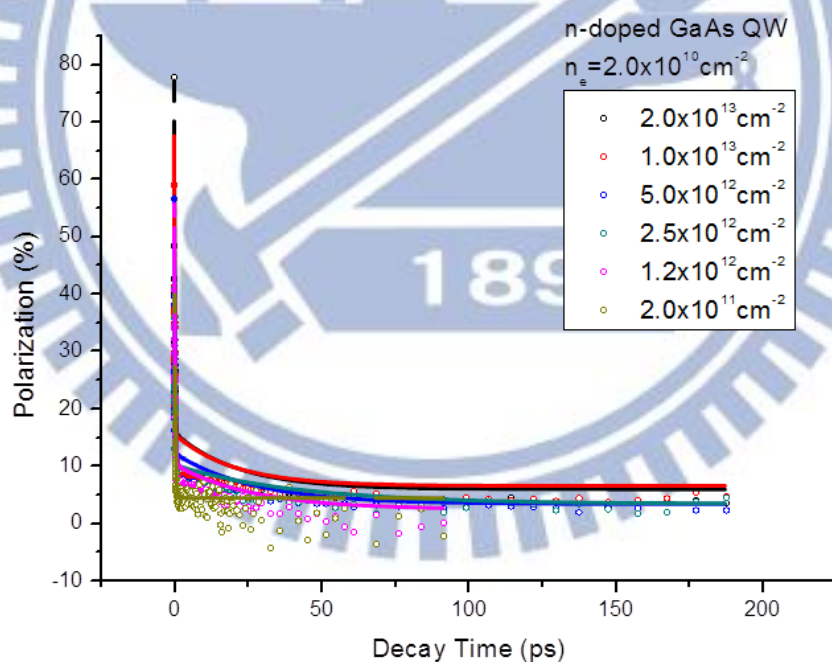


圖 4-10 低濃度摻雜 n-GaAs QW 之自旋極化率的擬合曲線

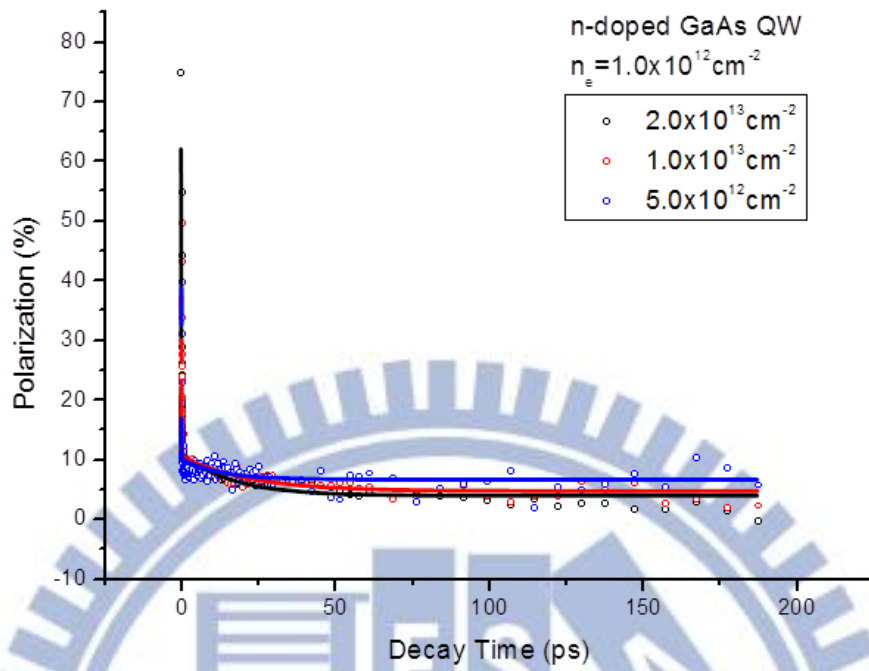


圖 4-11 高濃度摻雜 n-GaAs QW 之自旋極化率的擬合曲線

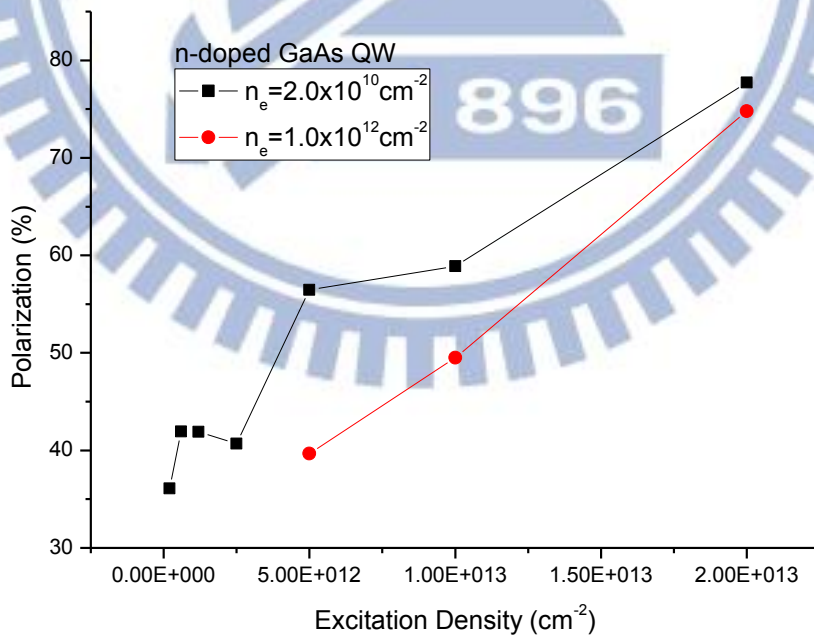


圖 4-12 n-GaAs QW 不同激發密度下，自旋極化率的變化

由圖 4-12，可以明顯觀察到對不同摻雜濃度的 n-GaAs 量子井，隨著激發密度的增加，呈現遞增的趨勢，而低摻雜濃度 $n_e = 2.0 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 的自旋極化率都比高摻雜濃度 $n_e = 1.0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ 來的高。我們可以利用簡單的推導來驗證，如圖 4-13 所示，由於電洞受到自旋軌道偶合影響，自旋極化迅速衰退，因此假設當電子電洞復合時，電洞已不具有自旋極化。

設摻雜濃度為 n_e 、激發密度為 N_{ex} ，並代入式 4-1，得到

$$P_{circular} = \frac{I^+(t) - I^-(t)}{I^+(t) + I^-(t)} = \frac{\left(n_{\downarrow} + \frac{n_e}{2}\right) - \left(\frac{n_e}{2}\right)}{\left(n_{\downarrow} + \frac{n_e}{2}\right) + \left(\frac{n_e}{2}\right)} = \frac{n_{\downarrow}}{n_{\downarrow} + n_e} \quad (4.6)$$

其中： $N_{ex} = n_{\downarrow}$

$$P_{circular} = \frac{N_{ex}}{N_{ex} + n_e} = \frac{1}{1 + n_e/N_{ex}} \quad (4.7)$$

可以看出自旋極化率決定於 n_e/N_{ex} ，摻雜濃度越大或激發密度越小，都會降低自旋極化率，可由圖 4-12 驗證。

AlGaAs/GaAs QW

Excitation

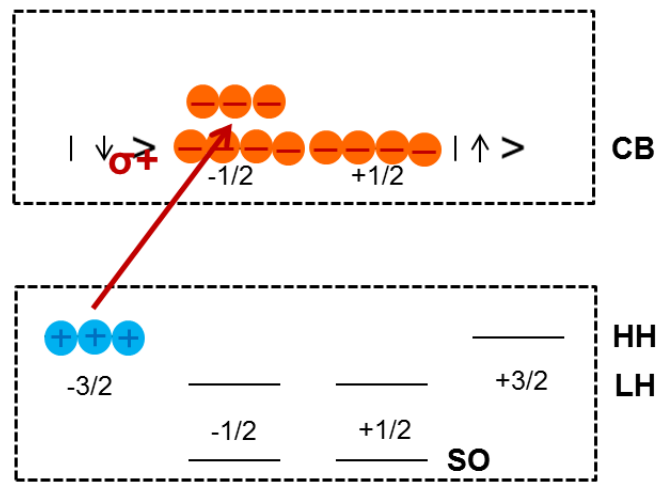


圖 4-13 n-GaAs QW 光激發過程

4-2-2 變激發密度及不同摻雜濃度之自旋鬆弛時間

圖 4-14 為摻雜濃度 $n_e = 2.0 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ N 型 GaAs 量子井在不同激發密度下自旋鬆弛時間的變化，可明顯地看到，電洞自旋鬆弛時間 τ_1 及電子自旋鬆弛時間 τ_2 都隨著激發強度的增加，先上升然後下降，從低激發密度開始，由於受到 DP 機制中強動量散射場 $\tau_p \Omega_{av} \lesssim 1$ 的影響，也就是說動量散射時間 τ_p 短於自旋電子轉動一圈的平均時間大小 τ_s ，所以電子尚未自旋進動完就會被散射至另外一個動量能階，因此隨著激發密度增加，越快速的動量散射抑制了電子自旋進動，使得自旋鬆弛時間延長，直到激發強度超過 $N_{ex} = 2.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ 時，受到非均勻擴展 (inhomogeneous broadening) 的影響 $\langle |\Omega_k|^2 - \Omega_z^2(k) \rangle \propto$

N_{ex}^2 [4.3]，由於激發密度的增加，越多的不均勻自旋電子彼此以不同 larmor 頻率進動，導致自旋耦合效應提升，造成自旋快速地鬆弛。

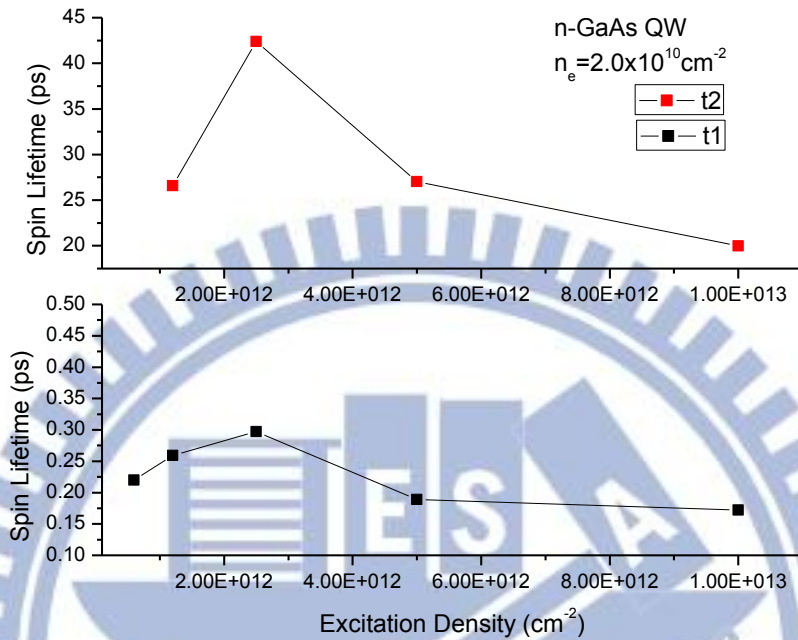


圖 4-14 n-GaAs QW 在不同激發密度的自旋鬆弛時間

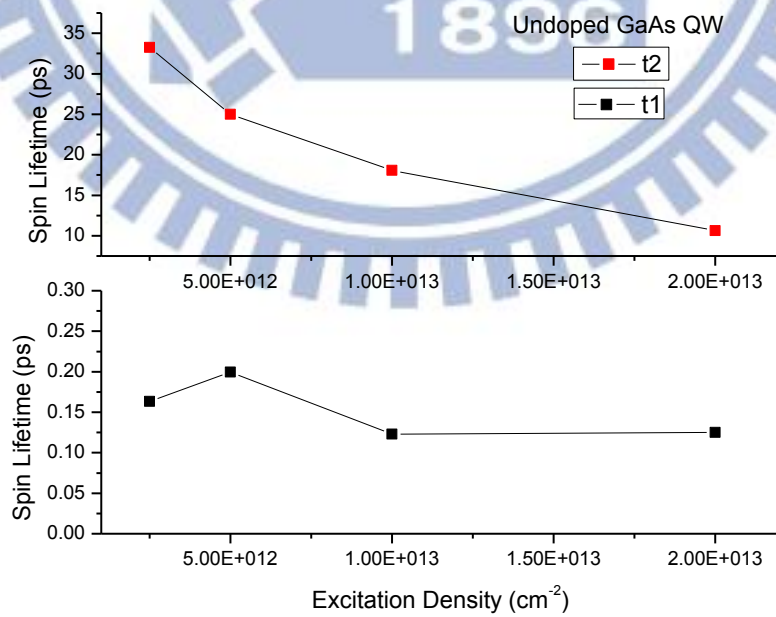


圖 4-15 undoped GaAs QW 在不同激發密度的自旋鬆弛時間

另外，將 N 型 GaAs 量子井與 Undoped GaAs 量子井的自旋鬆弛時間做比較，可以發現在各激發密度下，摻雜電子的 N 型 GaAs 量子井擁有較長的鬆弛時間，這是因為摻雜電子時可以提升碰撞速率，減少動量散射時間並抑制自旋鬆弛。

4-2-3 電洞自旋鬆弛時間

我們已知電洞自旋鬆弛時間遠比電子來的短，而當電子摻雜濃度 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 $P(0) = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}} \approx 0$ ，因此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。

但我們發現在量子井中，當電子摻雜濃度 n_e 與光激發密度 N_{ex} 相當時，就可以發現 $I^+(t)$ 和 $I^-(t)$ 快速重合，自旋極化率趨近於零，如圖 4-16、圖 4-17，導致自旋極化率的時間解析光譜由兩段變成一段。這說明在量子井中，極化率應該是受光激發的電洞及電洞鬆弛時間所控制，由於室溫下重電洞與輕電洞能帶的混合，並強烈地耦合，導致自旋電洞翻轉，因此電洞非常快速地鬆弛。

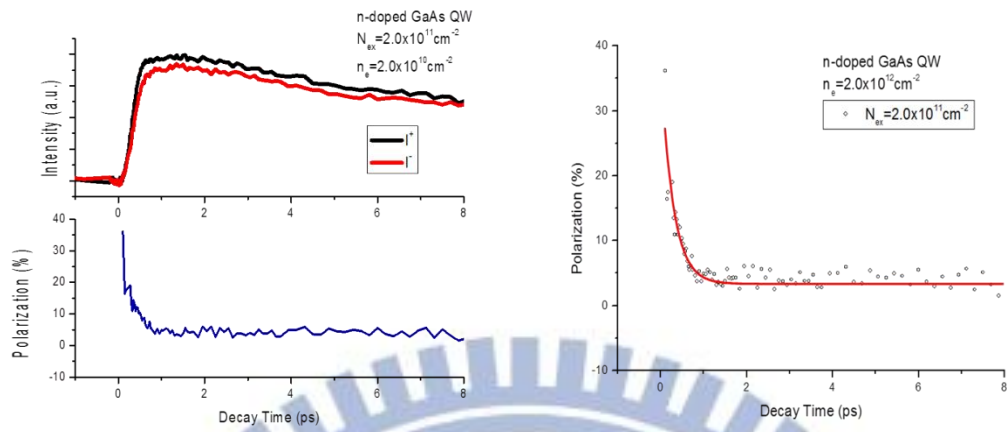


圖 4-16 n-GaAs QW 低激發密度自旋時間解析光譜與自旋極化率擬合

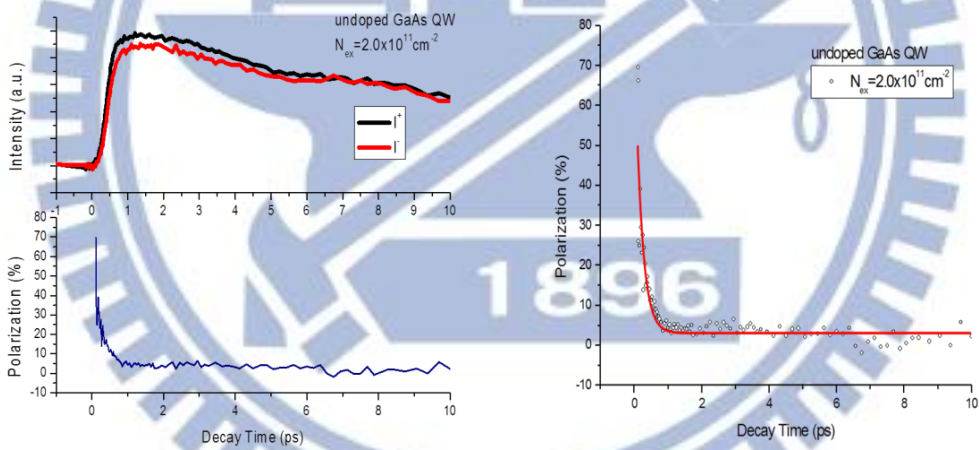


圖 4-17 GaAs QW 低激發密度自旋時間解析光譜與自旋極化率擬合

4-3 P 型 GaAs 的自旋動力學

對於 P 型半導體，除了 DP 機制尚須考慮 BAP 機制。由於缺乏電子，自旋鬆弛行為由電子所主宰。

4-3-1 變激發密度及不同摻雜濃度之自旋極化率

我們選用摻雜濃度 $n_h = 2.0 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 與 $n_h = 1.0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ 的 P 型 GaAs 量子井，如圖 4-19、圖 4-20，並以 1.59eV 的 σ^+ 的光在不同激發密度下激發，所得到的自旋極化率的擬合曲線。

由圖 4-18，可以發現到 P 型 GaAs 量子井在不同摻雜濃度 n_h 和不同激發密度 N_{ex} 下，初始極化率沒有太大的改變，這也驗證了前面所推測的，極化率應該是受光激發的電洞及電洞鬆弛時間所控制，由於 P 型 GaAs 量子井缺乏電子，自旋鬆弛行為由電子所主宰，因此極化率較不受影響。

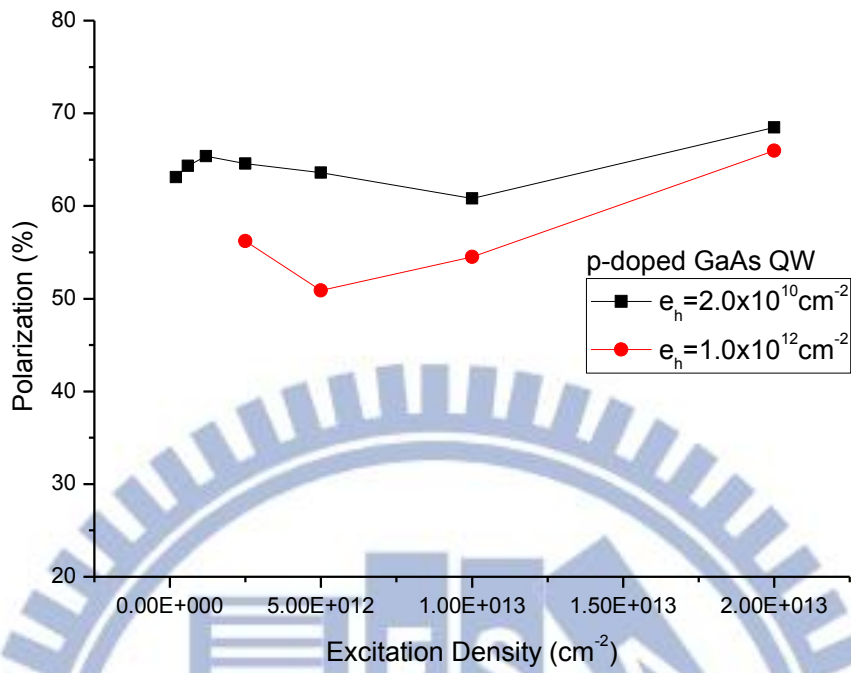


圖 4-18 p-GaAs QW 不同激發密度下，自旋極化率的變化

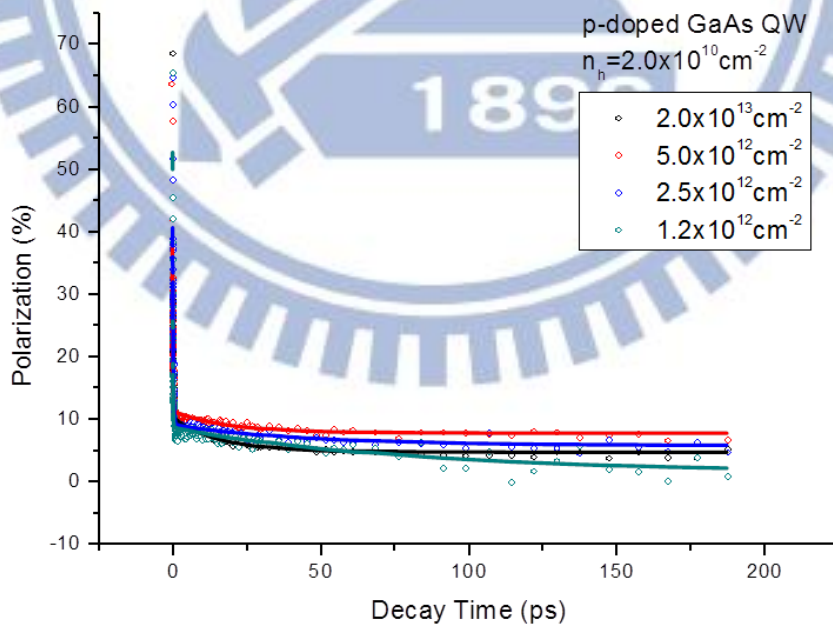


圖 4-19 低濃度摻雜 p-GaAs 量子井之自旋極化率的擬合曲線

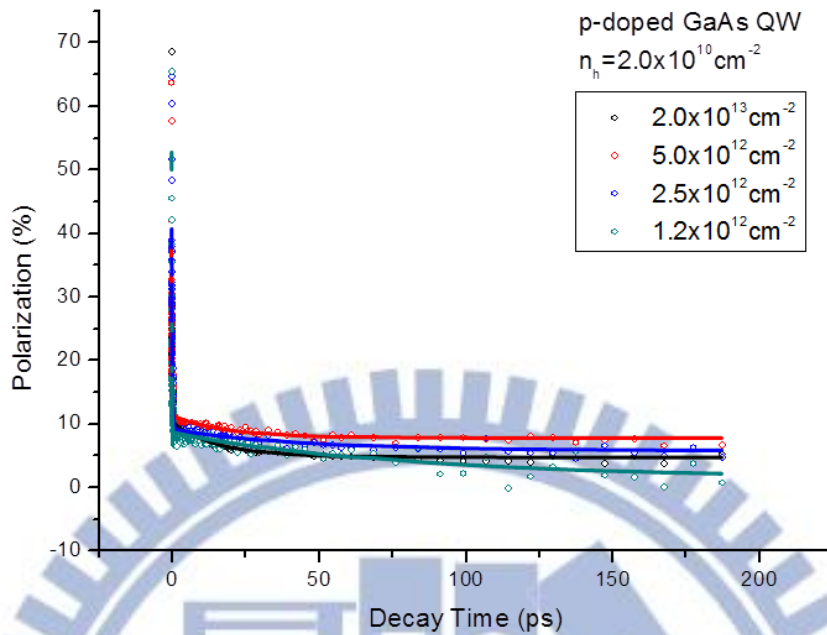


圖 4-20 高濃度摻雜 p-GaAs 量子井之自旋極化率的擬合曲線

4-3-2 變激發密度及不同摻雜濃度之自旋鬆弛時間

圖 4-21 為摻雜濃度 $n_h = 2.0 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ P 型 GaAs 量子井在不同激發密度下自旋鬆弛時間的變化，為了釐清在室溫下 BAP 機制是否影響 P 型 GaAs 量子井的自旋鬆弛機制，將其與 undoped GaAs 量子井做比較，由圖 4-20 和圖 4-15 相比較，可以發現在光激發密度 $N_{ex} = 5.0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ 下的時候，由於 DP 機制的強動量散射場 $\tau_p \Omega_{av} \lesssim 1$ 的影響，自旋鬆弛時間較長，但與 undoped GaAs 量子井相比則稍微短一點，表示 BAP 機制此時佔有一定比例的影響，由於電子和電洞間的交換作用(exchange interaction)，導致自旋鬆弛。

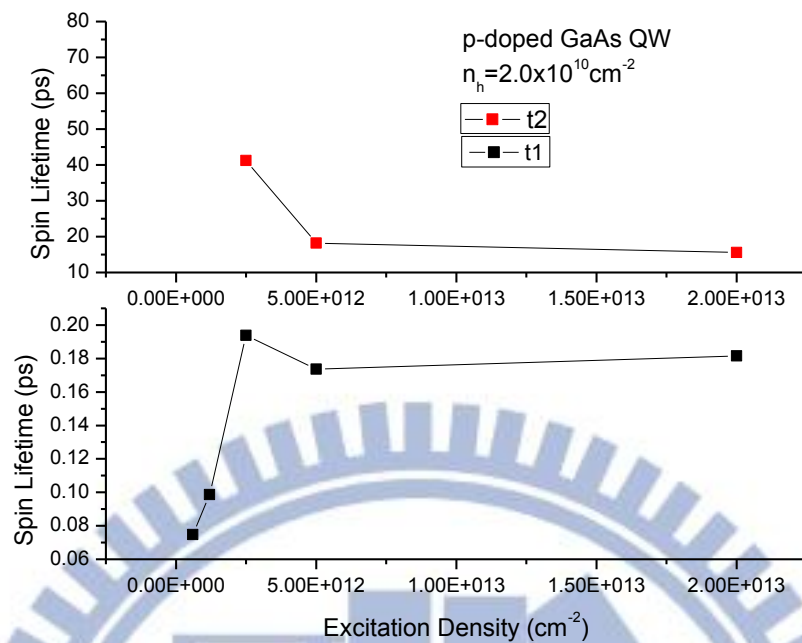


圖 4-21 p-GaAs QW 在不同激發密度的自旋鬆弛時間

此外，由圖 4-21，可以發現 P 型 GaAs 量子井在短程 ($t < 0.75\text{ps}$) 的自旋鬆弛非常快速，當激發密度越小，自旋極化率在 0.75ps 前的自旋鬆弛時間越短，可見摻雜電洞扮演很重要的角色，雖然自旋電子鬆弛的過程在量子井中並不明顯，且 P 型 GaAs 量子井還是受到電洞的影響，但由於缺乏電子，還是可以觀察到 P 型 GaAs 量子井迅速進入長程 ($t > 0.75\text{ps}$) 自旋鬆弛的行為。

4-4 GaAs 量子井與塊材的自旋特性差異

GaAs 塊材由於重電洞 (heavy hole, $|m_j = -3/2\rangle$) 和輕電洞 (light hole, $|m_j = -1/2\rangle$) 之間的 σ^+ 相對轉移機率 (transition probability) 為

$$\frac{\left| \left\langle 1/2, -1/2 \left| Y_1^1 \right| 3/2, -3/2 \right\rangle \right|^2}{\left| \left\langle 1/2, 1/2 \left| Y_1^1 \right| 3/2, -1/2 \right\rangle \right|^2} = 3 \quad (4.8)$$

初始極化率因此只能達到 50%，但量子井由於重電洞和輕電洞的能階分裂，相較於塊材，初始極化率理論上可以達到 100%。

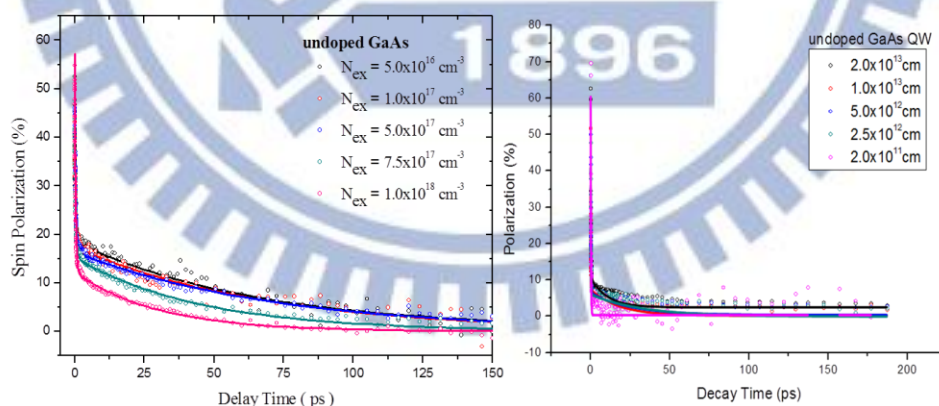


圖 4-22 (a)GaAs bulk (b)GaAs QW 自旋極化率的擬合曲線

由圖 4-22(b)，可以發現 GaAs 量子井實際測量到的值，並沒有達到 100%，這是因為輕電洞的能帶間躍遷矩陣含有 z 軸的分量[4.1]，式 4.2、式 4.3，因此當激發密度增加時，輕電洞能階上升，導致重電

洞和輕電洞嚴重混合[4.2]，造成自旋極化率的下降。

不過經由實驗觀察，量子井中極化率應該是受光激發的電洞及電洞鬆弛時間所控制，因此可以藉由適度的摻雜電子，來達到較高的初始極化率，如圖 4-23。

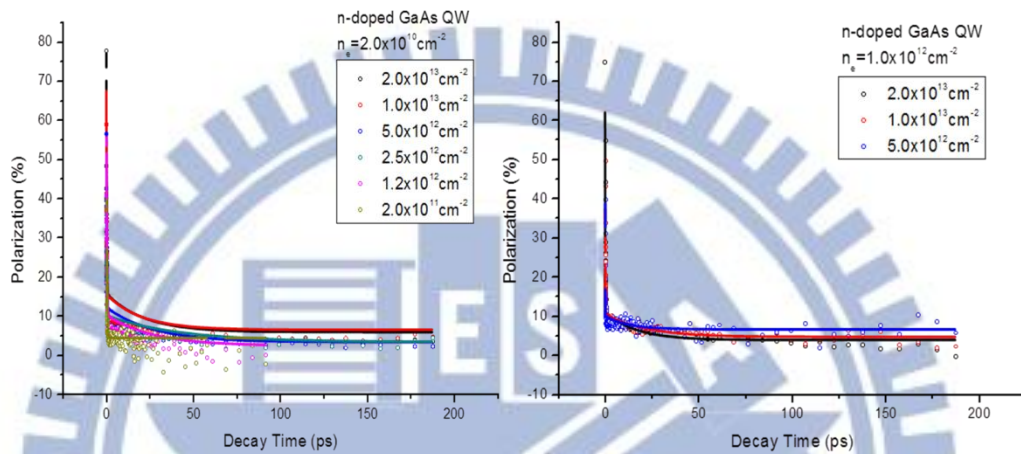


圖 4-23 不同摻雜濃度的 n-GaAs QW 自旋極化率的擬合曲線

表 4-2 undoped GaAs 塊材自旋鬆弛時間

$N_{ex}(cm^{-3})$	5.0×10^{16}	1.0×10^{17}	5.0×10^{17}	7.5×10^{17}	1.0×10^{18}
$\tau_1(ps)$	0.45	0.46	0.45	0.38	0.35
$\tau_2(ps)$	65.80	77.39	72.18	50.49	29.73

表 4-3 undoped GaAs 量子井自旋鬆弛時間

$N_{ex}(cm^{-2})$	2.5×10^{12}	5.0×10^{12}	1.0×10^{13}	2.0×10^{13}
$\tau_1(ps)$	0.163	0.200	0.123	0.125
$\tau_2(ps)$	33.244	25.005	18.089	10.623

另外，我們將二維(001)GaAs 量子井與三維 GaAs 塊材的自旋鬆弛做比較，如表 4-2、表 4-3 所示，可以觀察到(001)量子井的自旋鬆弛時間比塊材來的短，推測是因為(001)量子井受到較強烈自旋軌道耦合影響，並造成電子自旋進動，產生較迅速的自旋鬆弛。

我們可以藉由反稱不對稱中二維 Dresselhaus 自旋分裂以及內在 Larmor 進動頻率向量來解釋[4.4]

$$\Omega(k) = \alpha \hbar^2 (2m_c^3 E_g)^{-1/2} \kappa \quad (4.9)$$

$$\kappa_x = k_n^2 [2n_x (n_y k_y - n_z k_z) + k_x (n_y^2 - n_z^2)] \quad (4.10)$$

代入以 tensor 表示的方程式

$$\frac{1}{\tau_{s,ii}} = \gamma_l^{-1} \tau_p (\overline{\Omega^2} - \overline{\Omega_l^2}), \quad \frac{1}{\tau_{s,ij}} = -\gamma_l^{-1} \tau_p \overline{\Omega_i \Omega_j} \quad (4.11)$$

得到

$$\frac{1}{\tau_{s,ij}} = \frac{(\delta_{ij} \text{Tr} \hat{v} - v_{ij})}{\tau_{DP}(E_k)} \quad (4.12)$$

其中

$$\frac{1}{\tau_{DP}(E_k)} = \frac{\alpha^2 \hbar^2 (k_n^2)^2}{2m_c^2 E_g} E_k \tau_p(E_k) \quad (4.13)$$

最後將二維(001)GaAs 量子井代入

$$v_{zz} = 4n_z^2 (n_x^2 + n_y^2) - (n_x^2 - n_y^2)^2 (9n_z^2 - 1) \quad (4.14)$$

以及 x 和 y 方向，再代回式 4.12

最後可得到 DP 機制下，二維(001) GaAs 量子井中，各方向自旋鬆弛時間比

$$\frac{1}{\tau_{s,xx}} = \frac{1}{\tau_{s,yy}} = \frac{1}{2\tau_{s,zz}} = \frac{1}{\tau_{DP}(E_k)} \quad (4.15)$$

也就是說將三維塊材侷限成(001)量子井後，由於自旋軌道耦合中的二維 Dresselhaus 反稱不對稱項，造成 Larmor 進動，導致二維(001)量子井中自旋鬆弛較三維塊材來的快速。



4-5 參考文獻

[4.1] D'yakonov M I and Perel V I, Optical Orientation ed F Meier and B P Zakharchenya (Amsterdam:Elsevier) pp 11–71 (chapter 2) (1984)

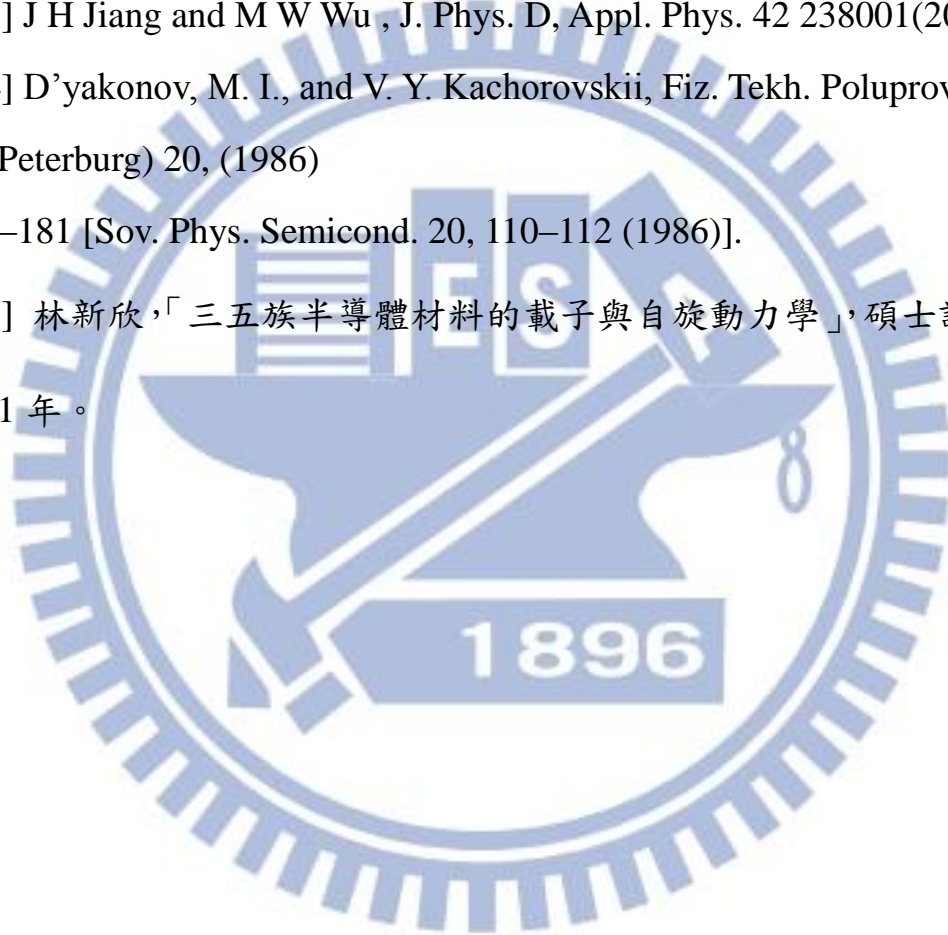
[4.2] J Hübner and M Oestreich, Semicond. Sci. Technol. 23 (2008) 114006

[4.3] J H Jiang and M W Wu , J. Phys. D, Appl. Phys. 42 238001(2009).

[4.4] D'yakonov, M. I., and V. Y. Kachorovskii, Fiz. Tekh. Poluprovodn. (S.-Peterburg) 20, (1986)

178–181 [Sov. Phys. Semicond. 20, 110–112 (1986)].

[4.5] 林新欣,「三五族半導體材料的載子與自旋動力學」,碩士論文, 2011 年。



第五章 結論

我們利用自旋鬆弛時間解析光譜來探討二維(001)GaAs/AlGaAs 量子井的自旋動力學並與三維塊材做比較，發現與塊材一樣有兩段的自旋鬆弛，第一段的快速鬆弛約小於 500 飛秒，並受到 N 型 GaAs 量子井的影響，因此推測第一段的快速鬆弛是由電洞所造成。第二段較為緩慢鬆弛則為數十皮秒，是自旋電子鬆弛的過程，但在 GaAs 量子井中並不明顯，所以推測 GaAs 量子井主要是受到電洞的影響。

二維 GaAs 量子井和三維 GaAs 塊材在室溫之下，主要都受到 DP 機制的影響，由於強動量抑制，自旋鬆弛時間隨著激發密度增加而延長，但達到一定的激發密度時，會因為非均勻擴展(inhomogeneous broadening)的效應影響，加速自旋鬆弛，但是二維 GaAs 量子井由於受到更強烈的自旋軌道耦合影響，自旋鬆弛時間比三維 GaAs 塊材還要來的短。

二維 GaAs 量子井由於輕電洞與重電洞的分裂，可以達到較高的自旋極化率，我們在本質與 N 型(001)GaAs 量子井中都發現低激發密度下，自旋鬆弛行為由電洞所主宰，且在低摻雜 N 型(001)GaAs 以高光激發密度激發，自旋極化率可接近 80%，因此推測二維 GaAs 量子井極化率應該是受光激發的電洞及較長的電洞鬆弛時間所控制。