

國立交通大學

分子科學研究所

碩士論文

Carrier spin dynamics in InAs/GaAs QDs

砷化銦/砷化鎵量子點中載子自旋動力學

研究生：陳曉陽

指導教授：孫建文 博士

中華民國 九十六年七月

摘要

之前我以時間解析光譜儀，在室溫下研究砷化銦/砷化鎵自組裝量子點的載子捕捉與釋熱過程。因此，在原有之時間解析系統上，建構出一套擁有分析光波極化方向能力的新系統。藉此研究量子點、溼潤層和基板內自旋載子的產生與弛豫。在 77K 的低溫下，電子和電洞的自旋機制已被探知，電子生命週期約 100ps；電洞生命週期約 20ps。室溫下砷化鎵塊材內自旋電洞的弛豫速度極快，大約在 100fs，但自旋電洞在量子點內保存的時間較長。

由於 upconversion 系統擁有高時間解析度，正可藉由實驗來研究自旋載子在砷化銦/砷化鎵量子點內的動態行為。在分析數據時，發現自旋極化率弛豫的時間曲線無法以一個指數來分析(exponential fit)，必須以兩個指數(雙指數函數)。得到的兩個生命週期(lifetime)中，較快的自旋弛豫趨勢主要藉由庫倫力產生的載子—載子散射所貢獻；而較長的自旋弛豫趨勢則由自旋載子與聲子作用使然。

Abstract

I have investigated the carrier capture and relaxation processes in InAs/GaAs self-assembled quantum dots at room temperature by time-resolved photo-luminescence techniques previously. So a polarization-resolved photo-luminescence up-conversion spectroscopy was set up from the original time-resolved system. Then we can use it to study carrier spin capture and relaxation in quantum dots, wetting layers, and barrier. The electron and hole spin lifetimes are found (electrons spin: $\sim 100\text{ps}$; hole spin: $\sim 20\text{ps}$) at 77K. The rapid relaxation of hole spin is about 100fs in bulk GaAs at room temperature, but it is preserved in quantum dots longer time.

Because up-conversion system is performed with high time resolution, we can do experiments to study carrier spin dynamics in InAs/GaAs quantum dots. The time-resolved measurements reveal that spin relaxation time can not be fit with monoexponential but can be fit with biexponential. The fast decay time is primarily attributed to the carrier-carrier scattering by coulomb interaction. And the slow decay time corresponds to the spin flip process with phonons.

誌謝

兩年的碩士生涯即將結束，研究工作告一段落，論文業已完成。首先要致謝的是指導教授孫建文博士，當我在器材的操作上偶遇瓶頸，幸蒙教授適時提點，實驗方能順心應手；並於寫論文的過程中得其理論上之思考導引。且在申請工研院時，更感激教授撰寫的推薦函。

口試當天，幸蒙吳仲卿教授指正論文排版、標示…等缺漏及內容表達的謬誤，使本論文更臻完美；並由衷感謝周武清教授對我在數據處理和實驗結果闡述的指導。

再者，感謝交大奈米中心主任李建平教授及其研究團隊，尤其是羅明城、凌鴻緒兩位學長在奈米結構的製作及半導體材料特性的闡述，給予實驗上極大的助益。還有我的學長蔣克瑜在實驗室交接時耐心的講解與不厭其煩的示範，二人同心協力得以使系統順利運作，在此一并致上謝意。

兩年來因埋首研究工作鮮少返家，而母親總在背後默默扮演著支持與鼓勵的角色，幸賴家姊代為侍親盡孝，由衷感激。

最後，謹以此論文獻給生我育我辛勤勞苦的母親。

目錄

中文摘要.....	I
英文摘要.....	II
目錄.....	IV
圖目錄.....	VI
表目錄.....	VIII
第一章 緒論.....	1
1-1 前言.....	1
1-2 電子自旋相關原理.....	2
1-2-1 半導體能帶分佈.....	2
1-2-2 光子與自旋載子.....	4
1-2-3 自旋載子弛豫.....	5
1-3 自旋電子元件.....	9
1-3-1 自旋閥與量子穿隧.....	9
1-3-2 自旋偏極化場效電晶體.....	10
1-3-3 自旋發光二極體.....	11
1-3-4 MRAM.....	12
第二章 研究動機.....	14
2-1 理論與研究方向.....	14
2-2 發展階段.....	16

第三章 時間解析光譜.....	18
3-1 時間解析光譜技術.....	18
3-2 Up-conversion 原理及系統架構.....	19
3-2-1 up-conversion 歷史沿革.....	19
3-2-2 up-conversion 實驗架構.....	19
3-2-3 up-conversion 光學原理.....	23
3-2-4 合頻訊號及二階諧波的數學推導.....	24
第四章 實驗介紹及樣品說明.....	30
4-1 電子自旋弛豫時間解析光譜實驗架構.....	30
4-2 樣品材料及特性.....	33
4-2-1 樣品結構.....	35
4-2-2 樣品之光學特性.....	37
第五章 實驗結果與討論.....	39
5-1 數據分析.....	39
5-1-1 量子點大小與發光特性.....	39
5-1-2 型態 I 量子點內載子自旋.....	41
5-1-3 Carrier-Carrier Scattering 與載子自旋.....	48
5-1-4 移動載子與內感磁場.....	49
5-2 電子自旋弛豫機制.....	51
第六章 結論.....	56
參考文獻.....	57

圖目錄

圖 1-1 光波行進中電場極化方向.....	5
圖 1-2 直接帶隙半導體能帶邊緣結構簡圖.....	6
圖 1-3 圓偏振光激發電子躍遷與能帶關係圖.....	7
圖 1-4 右旋光激發重電洞、輕電洞載子比例.....	8
圖 2-1 自旋極化率弛豫過程.....	16
圖 3-1 up-conversion 實驗裝置圖.....	20
圖 3-2 光學延遲與時間解析.....	21
圖 3-3 時間零點與時間解析光譜圖.....	22
圖 3-4 非線性晶體內合頻及倍頻原理.....	23
圖 3-5 非線性晶體對應入射光角度.....	27
圖 3-6 BBO 晶體產生合頻訊號效率.....	29
圖 3-7 量子點放光波長、強度與溫度關係.....	29
圖 4-1 晶體快軸與慢軸對光波傳遞的影響.....	30
圖 4-2 四分之一波片極化線偏振光為圓偏振光.....	31
圖 4-3 原始 up-conversion 系統光路圖.....	31
圖 4-4 在原始 up-conversion 系統光路上架設偏光鏡.....	32
圖 4-5 線偏振光與圓偏振光對應四分之一波片關係圖.....	32
圖 4-6 電子自旋時間解析系統.....	33
圖 4-7 樣品 InAs/GaAs 量子點 AFM 圖-I.....	35

圖 4-8 樣品 InAs/GaAs 量子點 AFM 圖-II.....	35
圖 4-9 半導體型態 I、型態 II、型態 III 異質介面.....	36
圖 4-10 室溫下，砷化銦/砷化鎵量子點螢光光譜.....	37
圖 4-11 砷化鎵能帶圖.....	38
圖 4-12 砷化銦能帶圖.....	38
圖 4-13 砷化銦/砷化鎵量子點能帶結構.....	38
圖 5-1 室溫下不同尺寸量子點螢光光譜.....	39
圖 5-2 室溫下不同激發載子密度對應自組裝量子點螢光光譜.....	40
圖 5-3 十層砷化銦/砷化鎵量子點樣品結構.....	41
圖 5-4 室溫下，砷化銦/砷化鎵量子點螢光光譜.....	41
圖 5-5 線偏振脈衝雷射激發砷化鎵塊材情況下左旋光與右旋光強度.....	42
圖 5-6 右旋光脈衝雷射激發量子點左旋與右旋放光強度.....	43
圖 5-7 右旋光脈衝雷射激發量子點樣品左旋與右旋放光強度.....	44
圖 5-8 將左旋光、右旋光分裂轉為自旋極化率.....	44
圖 5-9 2ps 之內自旋極化率曲線.....	45
圖 5-10 超過 2ps 自旋極化率曲線.....	45
圖 5-11 量子點基態、激發態、溼潤層和基材的自旋極化率.....	46
圖 5-12 載子(電子)弛豫的螢光光譜圖.....	47
圖 5-13 激發光源強度與 Decay time 關係.....	48
圖 5-14 InGaAs/GaAs 量子點結構.....	49
圖 5-15 線性激發光源所產生之自旋極化.....	50

表目錄

表 1-1 自旋—角動量波函數.....	6
表 3-1 型態 I、型態 II 非線性晶體光軸與入射光極化方向關係.....	28
表 5-1 激發光源強度與 Decay time 關係.....	48



第一章 緒論

1-1 前言

電子元件利用的是電子的帶電性，使計算機或是數位資訊儲存建構在一個可以產生「0」、「1」兩種狀態的實體上。一個控制程式在經過編譯後，變成對這些建構位元實體的一序列物理操作，這些操作過程藉由改變或偵測位元實體的狀態，達到寫入、讀取、或作各類邏輯運算的目的。電子除了帶有電荷外，亦帶有自旋的特性；自旋向上(spin up)或自旋向下(spin down) 正可分出「0」、「1」兩種狀態，量子電腦(計算機)就是利用這兩種可區分的狀態操控或定義位元實體。

硬碟磁頭是自旋電子學領域中，很早商業化的產品。許多新材料，例如磁性半導體 (Ferromagnetic Semiconductor)、半金屬 (Half-Metal)在近年來被廣泛的研究，以求能有符合自旋電子元件應用所需要的性質。除此之外，自旋電子學還存在許多充滿潛力的應用，例如磁性隨機記憶體(MRAM, Magnetoresistive RAM)、自旋場發射電晶體(SFET, Spin FET)及自旋發光二極體(SLED, Spin LED)等等。但是，別於有些種類的電腦，量子位元的操作都必須是在量子力學的領域內，所以稱之為量子位元 (qubit)。

以上涉及的是如何控制電子自旋的同調性，這關係到電子極化率(spin polarization)的高低、電子弛豫時間(spin relaxation time)的長短。接著探討帶有

自旋資訊的電子侷限在幾何空間中之效應：量子點可藉由調整尺寸大小改變其能階狀態、或藉由不同的幾何排列以達到穿隧特性，用來製造奈米級的光電元件，更可開發出量子點發光二極體、量子點雷射、量子點偵測器、生物螢光檢測等相關技術產品，因此本實驗室選用一種高品質、極具發展潛力、廣泛用於日常用品的半導體材料—砷化鎵(GaAs)為主要樣品成份，針對砷化鎵上所成長的不同尺寸、結構、成份的量子點作有關電子自旋的量測，以圓偏振光(circularly polarized light)激發樣品內的電子，促使自旋向上與自旋向下的電子數目失去平衡。

1-2 電子自旋相關原理

1-2-1 半導體能帶分佈



半導體晶體中電子通常處在價帶抑或導帶，而帶隙(band gap)為導帶最低點與價帶最高點兩者間的能差，是不被允許存在能階或填有電子。導帶的最低點稱為導帶邊緣(conduction band edge)；價帶的最高點稱為價帶邊緣(valence band edge)。當束縛在價帶的電子吸收一個能量高於或等於帶隙能量差(E_g)時，電子躍遷至價帶同時在能帶產生一個電洞，躍遷方式可因聲子(phonon)是否參與，分為直接吸收過程(direct absorption process)；間接吸收過程(indirect absorption process)。若電子吸收高於帶隙能量差的光子，電子會傾向藉由與聲子作用，落至導帶邊緣再與價帶的電洞結合產生光子。

電子受光子激發躍遷而產生電子與電洞時，將電子視為帶有負電荷的載

子；電洞為帶有正電荷的載子。當載子處在外作用場之中，質量由原來的 m 變成有效質量 m^* (effective mass)。以粒子迴旋共振(cyclotron resonance)法可求得載子在導帶及價帶的有效質量，或定義費米面(Fermi Surfaces)。

電洞是能帶失去一個電子的另一種描述，與電子的質量、動量關係式為： $m_h = -m_e$ 、 $k_h = -k_e$ 。在價帶邊緣附近，電洞形成三重特有結構，依次為重電洞(heavy hole, hh)、輕電洞(light hole, lh)和自旋—軌道裂帶(spin-orbit split-off)。重電洞能帶和輕電洞能帶在布里淵區(Brillouin zone)的中心處能量簡併，並且與自旋—軌道裂帶相差能量 Δ_{so} 。[1]

三—五族、二—六族晶體的晶格多屬閃鋅結構。以此為例，價帶的頂部相當於軌道角動量 $l=1$ 的狀態，與自旋交互作用形成一個四重的簡並態

$$(j = \frac{3}{2}, m_j = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2}) :$$

$$\begin{cases} \text{Heavy Hole} \left| \frac{3}{2}, \pm \frac{3}{2} \right\rangle \\ \text{Light Hole} \left| \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2} \right\rangle \end{cases}$$

輕、重電洞是因為它們在垂直介面方向的有效質量 m 之大小而言的。考慮各方向的侷限作用，通常量子點的側面寬度遠大於垂直方向寬度，所以垂直方向的侷限性強。輕電洞的能階因為有效質量小，而被壓得較低。所以價帶邊緣的光吸收主要的貢獻來自重電洞。[2]

推算或量測精確的能階分佈，並利用時間解析光譜技術研究載子在克服能隙障礙後的動態，便可提供足夠理論與證據詳細的分析載子—載子之間在時間

維度上的行為。然而僅得到載子在主量子數(principal quantum number, n)上躍遷的過程，是不具備鑽研電子自旋的全部條件。因此，接著引入軌道角動量、自旋角動量及選擇定理(selection rule).....等概念來設計一套研究電子自旋的實驗。

1-2-2 光子與自旋載子

當一束線性偏振的光波作用在載子上，受激發的載子總角動量為零。但是若使用圓偏振(circularly polarized)光激發樣品，會使自旋向上與自旋向下的電子數目失去平衡，這是由於光子帶著一個單位的角動量，若光子和自旋數是 $-\frac{1}{2}$ 的自旋向下電子相加，將會得到自旋數為 $\frac{1}{2}$ 的自旋向上電子。持續穩定地射入這些光子可使自旋向上的電子數多於自旋向下的電子數。許多自旋電子學實驗都利用到量子井(quantum well)結構，由於中間薄層的厚度極小($<100nm$)，電子沿垂直層面方向的運動因而受到侷限；換句話說，薄層如同一窄長凹槽般地將電子困於其中。根據電子傳輸理論，晶格體的非對稱性導致量子井中自旋向上及自旋向下電子，有著非零但方向相反的平均速度。當自旋向上與自旋向下電子數不等時，便因應而產生自旋極化電流。

把圓偏振的雷射脈衝打在以半導體材料製作的量子井的頂面上，即使雷射光入射角度不再垂直於頂面，其所產生自旋極化電流的方向仍與雷射光束垂直。這證明了雷射光只提供電子角動量，而非線性動量。[3]

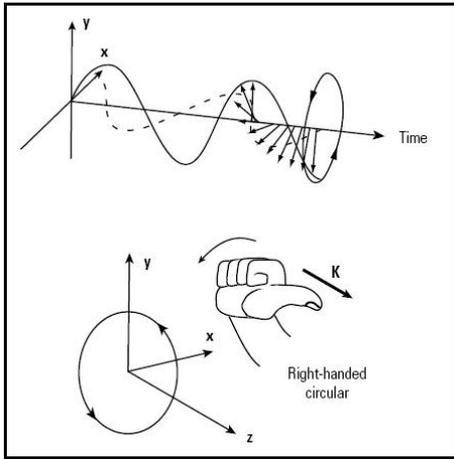


圖 1-1 光波行進中電場極化方向

將光子行進的方向定義為 z 軸，以右手螺旋定則來定義入射樣品的雷射極化模式。符號“ σ^\pm ”對代表球型諧波 $Y_l^m(\theta, \phi)$ 的 $l=1, m=\pm 1$ 項

($Y_1^{\pm 1}(\theta, \phi) = \mp \left(\frac{3}{8\pi}\right)^{1/2} \sin\theta e^{\pm i\phi}$)，這是由於光子的角動量量子數為 1，因此在幾何空間

中存在 $\sigma^\pm \propto Y_1^{\pm 1} \propto (X \pm iY)$ 的對應關係。 σ^+ (positive helicity) 代表當觀察者逆向光傳播方向觀察時，光波的極化方向為逆時針旋轉； σ^- (negative helicity) 則為順時針旋轉。基於各研究領域對於左旋光(left helicity)、右旋光(right helicity)的定義不盡相同，因此接下來對入射雷射光極化方向一律由符號“ σ^\pm ”來表示。

1-2-3 自旋載子弛豫

以光子激發載子，載子在激發態回到基態的過程假設需要時間 τ (carrier relaxation time)，而載子所帶有的自旋資訊保存的時間為 τ_s (spin relaxation time)。當載子的自旋行為符合 $\tau_s > \tau$ 條件時，對於電子自旋相關研究是可行的。只要激發載子使其自旋量總數不平衡，利用時間解析度夠高的偵測器，配合光子帶有的自旋量與光波極化方向的對應關係，量測載子結合時所散射的螢光性

質，分析載子自旋的動態行為。

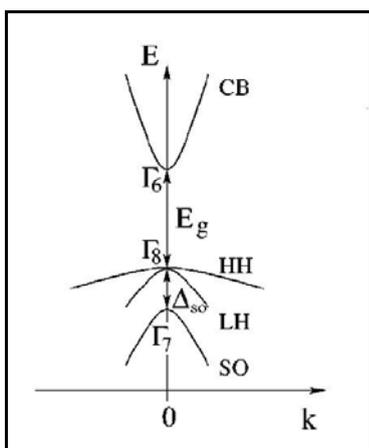


圖 1-2 直接帶隙半導體能帶邊緣結構簡圖

以砷化鎵半導體晶體為例：在價帶邊緣的重電洞和輕電洞能態為($j = \frac{3}{2}$ 、 $m_j = \pm \frac{1}{2}(LH), \pm \frac{3}{2}(HH)$)，自旋—軌道裂帶能態為($j = \frac{1}{2}$ 、 $m_j = \pm \frac{1}{2}(SO)$)，導帶邊緣的能態為($j = \frac{1}{2}$ 、 $m_j = \pm \frac{1}{2}(CB)$)；不受外加磁場作用，只考慮角動量—自旋角動量偶合(LS coupling)的情況下，總角動量波函數分別為：

Angular and spin part of the wave function at Γ .		
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$

表 1-1 自旋—角動量波函數

以線性極化的雷射激發砷化鎵晶體，且光子的能量大於 $E_g + \Delta_{so}$ 。線性極化的光波可視為極化方向為 σ^+ 與極化方向為 σ^- 的光子總數相等，重電洞、輕電洞

和自旋—軌道裂帶上的電子都可能受到激發。在沒有外加磁場及聲子等等破壞波函數狀態的假想情形，可以簡單的推算在導帶上電子所帶有自旋數總量為：

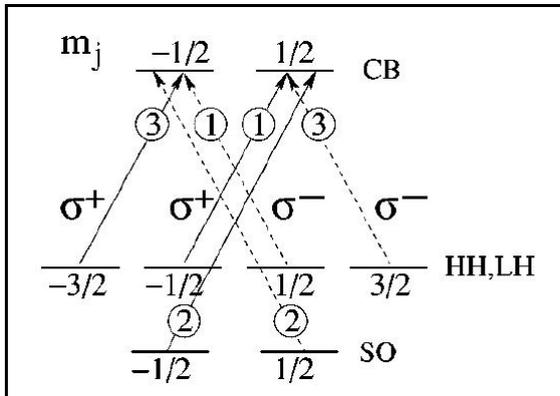


圖 1-3 圓偏振光激發電子躍遷與能帶關係圖

σ^+ 躍遷為電子的總角動量加一 ($\Delta m_j = +1$)， σ^- 躍遷為電子的總角動量減一 ($\Delta m_j = -1$)

實線①+實線②+虛線③躍遷的機率：

$$\left\langle \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \left| Y_1^1 \right| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} (LH) \right\rangle^2 + \left\langle \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \left| Y_1^1 \right| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} (SO) \right\rangle^2 + \left\langle \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \left| Y_1^1 \right| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} (HH) \right\rangle^2 = \frac{1}{6} + \frac{1}{2} + \frac{1}{3}$$

虛線①+虛線②+實線③躍遷的機率：

$$\left\langle \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \left| Y_1^1 \right| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} (LH) \right\rangle^2 + \left\langle \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \left| Y_1^1 \right| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} (SO) \right\rangle^2 + \left\langle \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \left| Y_1^1 \right| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} (HH) \right\rangle^2 = \frac{1}{6} + \frac{1}{2} + \frac{1}{3}$$

在導帶上自旋向上與自旋向下的機率相等： $\frac{1}{6} + \frac{1}{2} + \frac{1}{3} = \frac{1}{6} + \frac{1}{2} + \frac{1}{3}$ (在此僅討論機率的相對關係，因此對於波函數的歸一化並不嚴謹。)

必須重新設計出使受激電子在導帶向上、向下自旋數不均等的機制。將原來線性極化的光波改為帶有單一自旋數的光子群，單純以 σ^+ 激發砷化鎵晶體，得到新的躍遷模式：

實線①、②的躍遷使電子激發到自旋向上的能態，機率為：

$$\left| \left\langle \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \left| Y_1^1 \right| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} (LH) \right\rangle \right|^2 + \left| \left\langle \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \left| Y_1^1 \right| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} (SO) \right\rangle \right|^2 = \frac{1}{6} + \frac{1}{3}$$

虛線③的躍遷使電子激發到自旋向下的能態，機率為：

$$\left| \left\langle \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \left| Y_1^1 \right| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} (HH) \right\rangle \right|^2 = \frac{1}{2}$$

電子在導帶上自旋向上與自旋向下的機率依舊相等： $\frac{1}{6} + \frac{1}{3} = \frac{1}{2}$

若以 σ^+ 的圓偏振雷射激發砷化鎵晶體，光子的能量調控在 E_g 到 $E_g + \Delta_{SO}$ 之間時，只有實線①、③的電子躍遷機制產生，導帶上電子自旋的比例為：

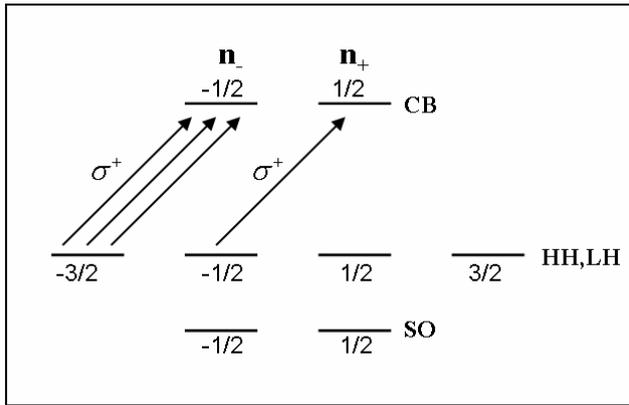


圖 1-4 右旋光激發重電洞、輕電洞載子比例

$$\frac{\text{spin down}}{\text{spin up}} = \frac{n_-}{n_+} = \frac{\left| \left\langle 1/2, -1/2 \left| Y_1^1 \right| 3/2, -3/2 \right\rangle \right|^2}{\left| \left\langle 1/2, 1/2 \left| Y_1^1 \right| 3/2, -1/2 \right\rangle \right|^2} = 3$$

(n_{\pm} 代表電子在導帶上自旋向上、向下的數量)

在取得自旋總數不匹配的前題下，接著討論與時間相關的現象。

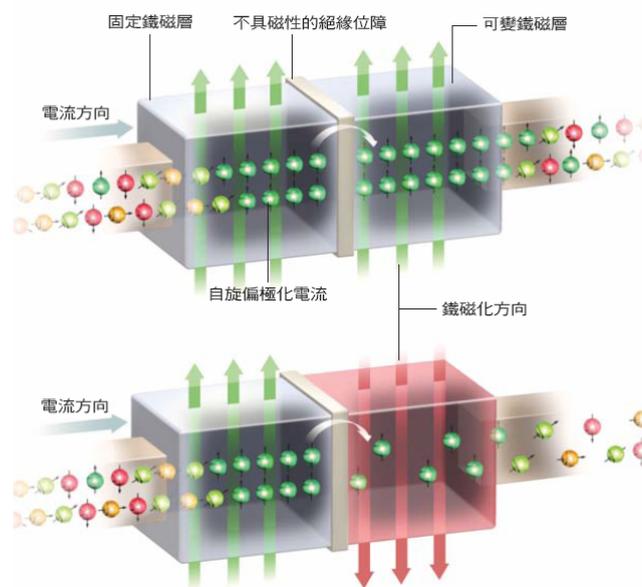
低溫($\approx 80K$)下電子處在激態比電子的自旋數保持的時間 τ_s 相對短的多，這符合 $\tau_s > \tau$ 的條件，電子與電洞結合產生的光子依舊帶有原來電子自旋的資訊。

但，在室溫下量測樣品，由於載子與聲子的作用頻繁，極度縮短了載子的弛豫時間(relaxation time)、生命週期(lifetime)和自旋生命週期(spin lifetime)，這是否影響或違背已知的理論基礎？在第五章—“實驗結果與討論”部份再作更深入的探討。

1-3 自旋電子元件

1-3-1 自旋閥與量子穿隧

電流在一般的電路中，電子自旋方向是混亂的，並不會影響導線的電阻或電晶體的放大率。反之，自旋電子元件正是利用自旋向上與自旋向下電子傳輸性質的差異來作用。例如在鐵和鈷等鐵磁物質裡，相鄰原子中的電子自旋傾向於排成同方向；而在強磁鐵中，自旋同向的區域會擴及整塊磁鐵。當電流通過鐵磁物質，當自旋朝某個方向的電子受到阻斷，產生了自旋朝反方向的偏極化電流。鐵磁物質甚至會影響附近非磁性金屬內的電流。



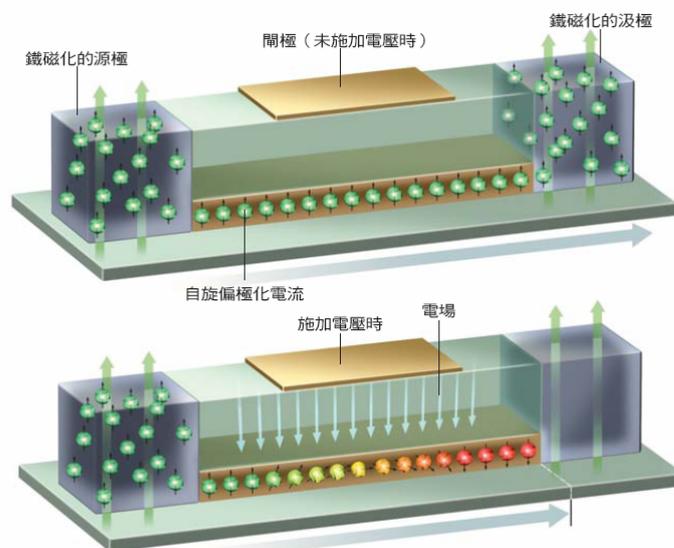
[4]

自旋閥的一般結構是由鐵磁性膜、非鐵磁性膜、鐵磁性膜、反鐵磁性膜所組成。其中的鐵磁性膜(稱做 pinned layer)與反鐵磁性膜(稱做 biasing layer)有磁性交換偏壓作用，因此“pinned layer”的磁化方向被固定在單一方向上。而另外的一層鐵磁性膜(稱做“自由層”, free layer)，由於非鐵磁性間隔層(spacer)的分離，並不受到偏壓層的影響，因此可隨著外加磁場而改變磁化方向。所以當磁場改變時，兩層鐵磁性膜的磁化方向的夾角也將隨著改變。當被固定層與自由層的磁化方向相同時，電子被繞射的機率低，因此對應於低電阻態。反之，當被固定層與自由層的磁化方向相反時，電子被繞射的機率高，因此對應於高電阻態。藉由此差異性自旋繞射效應，當外加磁場方向改變時，自旋閥可展現不同的電阻值。



1-3-2 自旋偏極化場效電晶體

自旋偏極化場效電晶體 (Spin-FET)，如同傳統FET 一般，有源極與汲極，中間夾著狹長的半導體通道。



[4]

自旋 FET 的源極與汲極均具鐵磁性，源極會將自旋偏極電流送入通道，如果到達汲極時其自旋方向不變，則此自旋電流可輕易地進入汲極。當電壓施加於閘極時，通道內會產生電場，使得快速流過的電子自旋產生進動或旋轉。汲極將根據自旋偏離的程度來阻擋自旋電流進入。以此方法翻轉自旋所需能量較少，且速度較快，因為傳統 FET 需施加更強的電場才能將電荷推出通道。

1-3-3 自旋發光二極體 (Spin-LED)

一個基本自旋閘電晶體，是由兩片 n-Si 基板面對面真空黏著，中間夾一個金屬自旋閘做為閘極，以結構為 Pt/Co/Cu/Co 的自旋閘為例，電晶體之汲極及集極均為蕭基位障 (Schottky barrier) 二極體結構。電子從 Si 中跨過位障注入閘極成為熱電子。這些熱電子之傳導受到 Co/Cu/Co 自旋閘中兩 Co 層磁化方向是否相同之影響。當外加磁場很小時，兩 Co 層磁化方向相反，不論是自旋向上或向下的電子均受到阻礙，電流較小。當外加磁場大到把兩層 Co 層之磁化方向拉成平行，此時自旋向上的電流大增。這種元件可以用做自旋發光二極體 (spin Light Emitting Diode, spin-LED)，發出左旋或右旋的光，與一般二極體發出線性極化之光且隨機指向有所不同。有時也可以由外加一小磁場產生 Zeeman 效應分裂導電帶底端，注入電子與不同能階交互作用，由於自旋向上與向下電子之作用強度不一樣，因此電子走一段距離後，大部分只剩某一種自旋極化的電子存在。

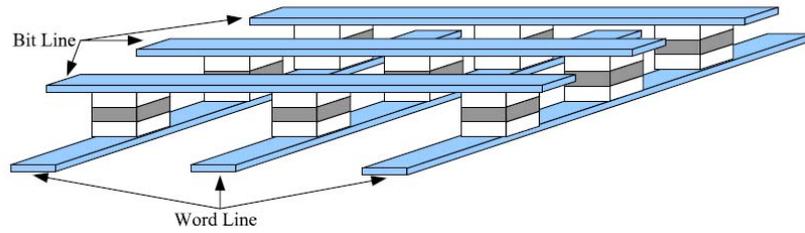
1-3-4 MRAM (Magnetic Random Access Memory)

目前的硬碟讀寫頭其構造是一層非磁性金屬夾在二層鐵磁金屬中間，第一層鐵磁金屬的磁化強度是固定的，第二層則可以改變。當讀寫頭在磁軌上讀取資料時，磁軌上記錄「0」與「1」資料的小磁場，會來回改變第二層鐵磁金屬的磁化方向，使其與第一層的磁化方向相同或相反，如果相同，只有那些自旋方向與之平行的電子才可以在避免嚴重散射的情況下流過傳導層。如果相反，所有的電子都會被擋住。

MRAM 記憶體則是一種利用具高敏感度的磁電阻材料所製造的記憶體，是一種新穎的非揮發性 (Non-Volatile) 記憶體，其特性在於此記憶體不論是在寫入或讀取的速度約為 10ns，可媲美靜態隨機存取記憶體 (Static Random Access Memory, SRAM)；同時在記憶容量約為 1GB 方面更可與動態隨機存取記憶體 (Dynamic Random Access Memory, DRAM) 相抗衡，並可提升密度以及速度一個數量級以上。因此是極具發展潛力，有機會取代 DRAM、SRAM 等所有半導體記憶體的新一代記憶體。

MRAM 的寫入機制是利用上下兩層 XY 軸向的導電金屬層，中間夾著穿隧式磁電阻(TMR)或是巨磁電阻(GMR)的記憶元(cell)。最上面的導電金屬稱為位元線(bit line)；最下面的金屬稱為字元線(word line)。當位元線通過一脈衝波時，此時自由層(free layer)的磁化方向因為受到位元線上的電流所感應的磁場影響而偏移一方向。若此時也在字元線上加一脈衝電流，使得所感應的磁場完全改變自由層的磁化方向，如此一來，兩鐵磁性層的磁化方向為順向排列(因磁電阻

低，可令其為 0)或反向排列(因磁電阻較高，可令其為 1)。



此外，由於 MRAM 可以與現有的 CMOS 製程整合，ITRS (International Technology Roadmap for Semiconductors) 已將其列為最新的下一代記憶體，短期內主要的應用在於取代攜帶式產品，如手機、PDA 及數位相機內的 Flash，2010 年後則以取代高性能的 DRAM 為主要目標。[5]



第二章 研究動機

2-1 理論與研究方向

1935 年，薛丁格提出著名的想像實驗「薛丁格的貓」：假想有一個鋼室，放進一隻活貓。而鋼室中有一個裝置，含有一粒放射性物質，在一小時內有二分之一機會放出一粒電子。如有電子放出，就會觸動機關放出毒氣將貓毒死。現在將鋼室關閉，一小時後打開，觀察貓之死活。

如果將足夠數量的相同裝置，皆放進一隻相同之薛丁格的貓，或在同一個可逆的裝置內，不同的時間重新放入一隻薛丁格的貓。貓活下來的機率和死去的機率將極為趨近(甚至相等)。藉由偵測量子點內載子在結合所散射之螢光來研究載子自旋的機制，就是在想像實驗的理論基礎上，以足夠數量相近的裝置(量子點)，設計出帶有角動量資訊之光子激發樣品，使量子點內電子、電洞自旋總數不匹配。從電子、電洞分離到重新結合的時間過程，自旋向上與自旋向下的載子數目比例不為定值，因此，選用脈衝雷射激發樣品，量測載子在時間維度上的自旋機制，觀察帶有不同角動量資訊的光子，遵循量子世界的何種機率法則。

由於在樣品的單位面積上，自組裝的量子點數目極大，因此，實驗數據所呈現的是總體效應，由結構極為相近的量子點同時提供大量的自旋資訊。儘管波爾(Niels Bohr)不相信上帝會和我們擲骰子，然而在人造原子(量子點)內，載

子自旋的行為確確實實符合了量子世界習慣將能階躍遷、能量轉移視為機率的表現。

在同一個可逆裝置內不同的時間重新放入一隻薛丁格貓，與在足夠數量的相同裝置皆放進一隻相同之薛丁格貓，結果是否相同？在想像實驗裡結果將會如預期一般，但是實際的實驗設計裡，重複量測單量子點與量測量子點群，結果可能與想像實驗迥異！這是由於在不破壞量子點結構情況下，針對單量子點作時間性量測，可以趨近完美的求取相同系統中的數據，但在某一次的量測值中，所彰顯的是載子行為在所有可能性裡的其中一種。。

在時間解析的實驗架構(本實驗室使用 upconversion)中，可以控制雷射脈衝寬度、波長與入射功率，且基於樣品(單量子點)能階分佈極為明確，整個實驗的設計對於能量誤差 ΔE 的降低極有幫助；但相對的提高了測不準原理 (uncertainty principle: $\Delta E \cdot \Delta t \geq \frac{\hbar}{2}$) 中的時間誤差項 Δt 。選用自組裝量子點 (self-assembled quantum dots) 為樣品，在同時對量子點群作量測，省去費時的重複性操作過程，並且避開量子點閃爍(QD blinking)的窘態。但也無可避免地，在量子點群裡因量子點之間靠得極近，所量測之訊號受到相鄰的量子點所構成的糾纏態(entanglement)所干擾。

量子點能階的分佈受到量子點幾何大小的影響甚巨，因此在選用樣品時對於量子點群的大小必須嚴格要求，以防能量誤差值 ΔE 的提高。透過對不同樣品的量測，可以逐步的了解各種半導體結構、材質中載子自旋的機制，並分析

spin-orbital interaction、spin-spin interaction、spin-lattice interaction、magnetic interaction.....等作用的產生與持續時間。

2-2 發展階段

近來已有利用時間解析系統研究載子自旋弛豫的團隊，量測出電子在10K的低溫下，於中性量子點(undoped QDs)內自旋弛豫時間大約在120ps；在80K下自旋弛豫時間則大約在85ps[7]。以往的實驗樣品選用量子井為主，而近幾年來由於量子點成長的技術趨於純熟，針對量子點的研究亦愈來愈多。

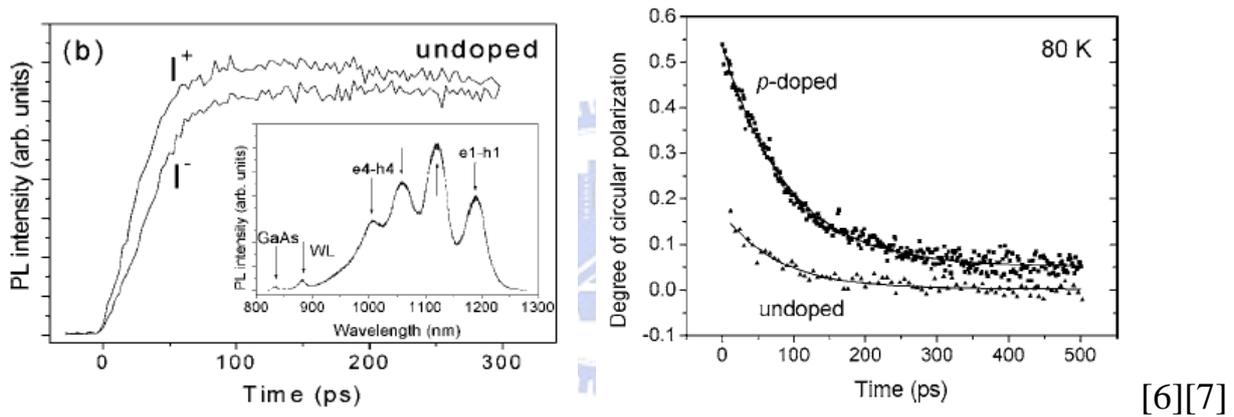


圖2-1 自旋極化率弛豫過程

為了規避聲子對自旋系統的擾動，實驗設計以低溫量測為主。吾人在室溫下進行實驗，取得奈米結構中電子在溫度293K下自旋的相關行為機制。使用 up-conversion 作時間解析，在系統極限(~150fs)的情況下，測量自旋極化率的弛豫過程，有效探討前幾個ps內的載子行為。由數據的分析，可以發現1至2個ps內自旋極化率快速弛豫的過程。若使用 Streak Camera 等時間解析度不夠高的量測系統或設定掃描尺度不夠精細，將無法探知上述的現象。

因為磁性半導體中自旋載子的轉向所需的能量遠高於本實驗所使用的純半導體奈米結構，所以在樣品中不摻雜磁性金屬。溫室下量測、不需強磁作用、僅用光激發樣品，使實驗貼近應用層面提高樣品的實用價值。



第三章 時間解析光譜

3-1 時間解析光譜技術

時間解析光譜一直為醫學、物理、化學、生物等多個領域所廣泛應用的技術，藉由對螢光輻射衰變過程的量測，瞭解物質隨時間變化的狀態。常見的技術有 Time-correlated Photon Counting Technique、Single Photon Counting Spectroscopy、Optical Kerr gate、Four Wave Mixing Spectroscopy、Pump-probe Spectroscopy、Streak Camera、Up-conversion Spectroscopy 等等。實驗室以半導體內載子為研究主題，故使用 Up-conversion 系統，針對半導體樣品所放出之螢光進行時間解析量測。

低溫下，半導體中自旋載子弛豫的時間大約在幾個ps到數十個ps，而室溫下由於晶格的振動表現活躍，提供足夠的聲子。Optical Kerr gate、Streak Camera 的解析度大約在數個ps，因此在室溫下無法精確的有效量測自旋載子行為。

Pump-probe Spectroscopy是在時間解析光譜實驗中很常被使用的一種實驗方法，在Pump-Probe的實驗架設中，一道脈衝雷射經過分光鏡被分為兩道，要被研究的樣品先被其中一道脈衝雷射(pump beam)激發，另外一道脈衝雷射光(probe beam)經過一段雷射光之後才打到樣品，由probe光我們可以得到樣品的反射、吸收、拉曼散射、螢光等等。

儘管Pump-Probe Spectroscopy的時間解析度就是雷射的脈衝寬度，可以達

到與Up-conversion Spectroscopy相近的解析度，但由於激發雷射與偵測雷射都先後擾動樣品，促使非預期的現象產生；樣品在受光激發之後，異質介面產生短暫的電荷疊積，產生內建電場，增加自旋載子研究的變因。[8][9]

在室溫對自旋載子作分析，必須考慮許多的參數，因此，Up-conversion Spectroscopy對樣品僅有一次性的激發，相較於其它的系統將使量測值大為貼近實際效應。

3-2 Up-conversion 原理及系統架構

3-2-1 up-conversion 歷史沿革

1960 年 Theodore Harold Maiman 發明紅寶石雷射(Ruby laser)，1961 年 P.A.Franken 等人利用紅寶石雷射(6943 \AA)打入石英晶體中，除了發現到原本紅寶石雷射的波段有穿透之外，並發現紅寶石雷射倍頻之後的訊號(3472 \AA)[10]。1962 年 J. A. Armstrong 等人提出 Upconversion 的構想，利用非線性晶體受強光電場的作用，將兩道不同頻率的光，在非線性晶體內因為非線性光學的作用，產生出合頻(Sum frequency generation , SFG)的訊號[11]。

3-2-2 up-conversion 實驗架構

本系統使用Verdi-V6半導體雷射為雷射源激發Ti-Sapphire固態(脈衝)雷射，實驗時隨欲量測樣品性質改變波長(750nm~900nm)，脈衝寬度大約150 fs (femtosecond 10^{-15} 秒)，週期(repetition rate)為76 MHz，平均功率為600mW。脈

衝雷射經過一片分光鏡將光路分為一道激發光(pump beam)和一道探測光(probe beam)，激發光激發樣品產生螢光(PL)，探測光經過時間的延遲與螢光在非線性晶體上重合產生合頻訊號(SFG)，所使用的晶體屬於 β -BBO (beta-BaB₂O₄ crystal)，當螢光、雷射、合頻訊號符合 $n_1^e \omega_1 + n_2^o \omega_2 = n_3^e \omega_3 \Rightarrow n_1^e k_1 + n_2^o k_2 = n_3^e k_3$ 時為最佳光路，式子裡上標的o和e各別代表非線性晶體的兩個折射率 n_o (ordinary index)、 n_e (extraordinary index)。

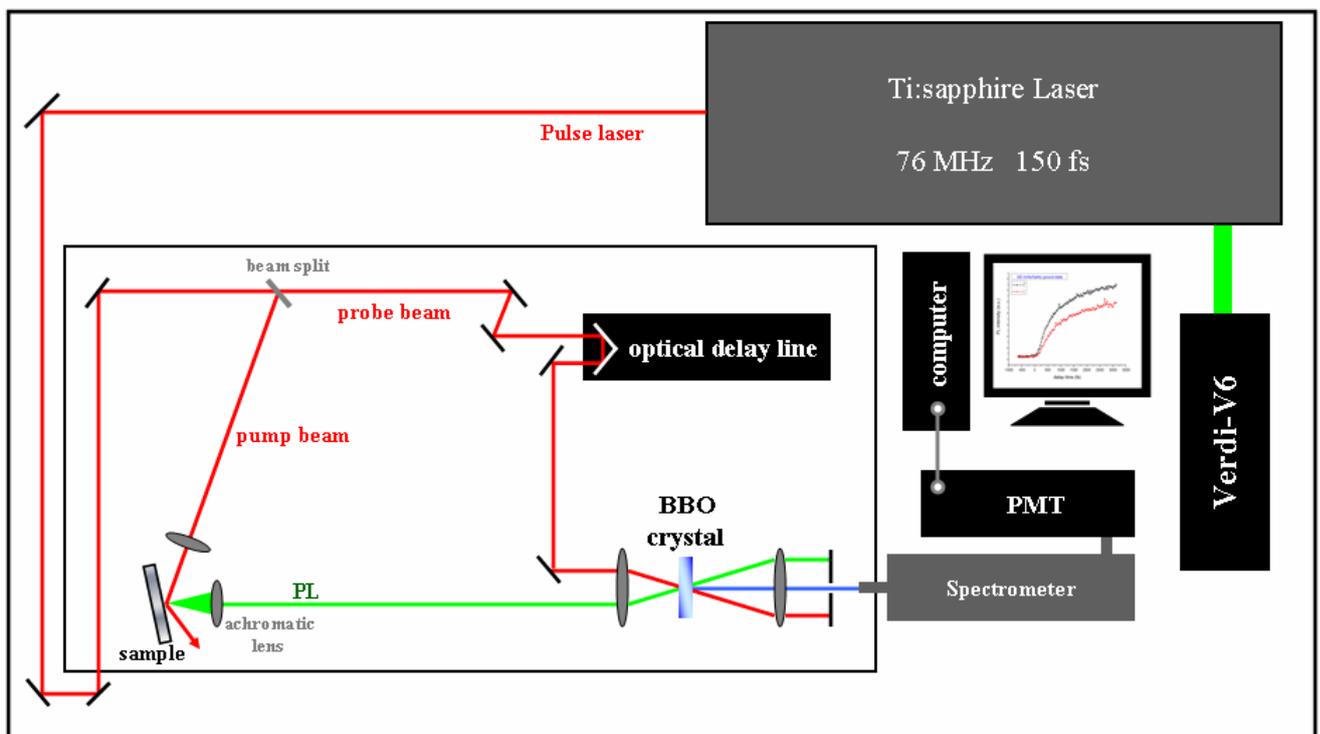


圖 3-1 up-conversion 實驗裝置圖

探測光(probe beam)經過光學延遲平台(optical delay line)，改變光程使其與樣品上螢光到達 BBO 晶體的時間產生光程差，藉此作時間上的解析，研究樣品上載子的特性。時間解析度為雷射脈衝寬度，而實際上脈衝寬度所指的是在定位零相位差(zero delay)時，auto-correlation 訊號半高寬(FWHM)。所謂的 auto-correlation 訊號是指產生合頻公式 $n_1^e \omega_1 + n_2^o \omega_2 = n_3^e \omega_3$ 裡雷射散射光和閘道光

(探測光)波長相同 $\omega_1 = \omega_2 (\lambda_1 = \lambda_2)$ ，如此定位 zero delay 在光路設計上較為簡便。

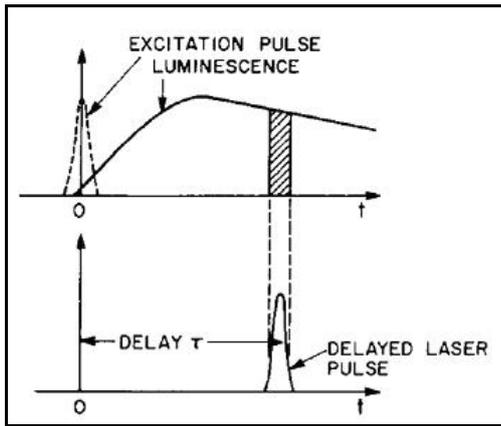


圖 3-2 光學延遲與時間解析

但在尋找合頻訊號時，必須小心的避開雷射散射光和閘道光各自與合頻訊號相同的倍頻訊號(Second Harmonic Generation, SHG)；解決辦法就是改變閘道光波長使 $\omega_1 \neq \omega_2 (\lambda_1 \neq \lambda_2)$ ，改為尋找 cross-correlation 訊號便可很容易的將合頻訊號與倍頻訊號區格開。定義 zero delay 通常是以 auto-correlation 或 cross-correlation 訊號頂點為時間零點。而理想雷射脈衝在時間上的分佈為狄拉克函數(Dirac delta function, δ function)，這使讀取數據時可以發現在 zero delay 時間零點之前，受到部分雷射強度的影響使得 SFG 訊號些微爬升。

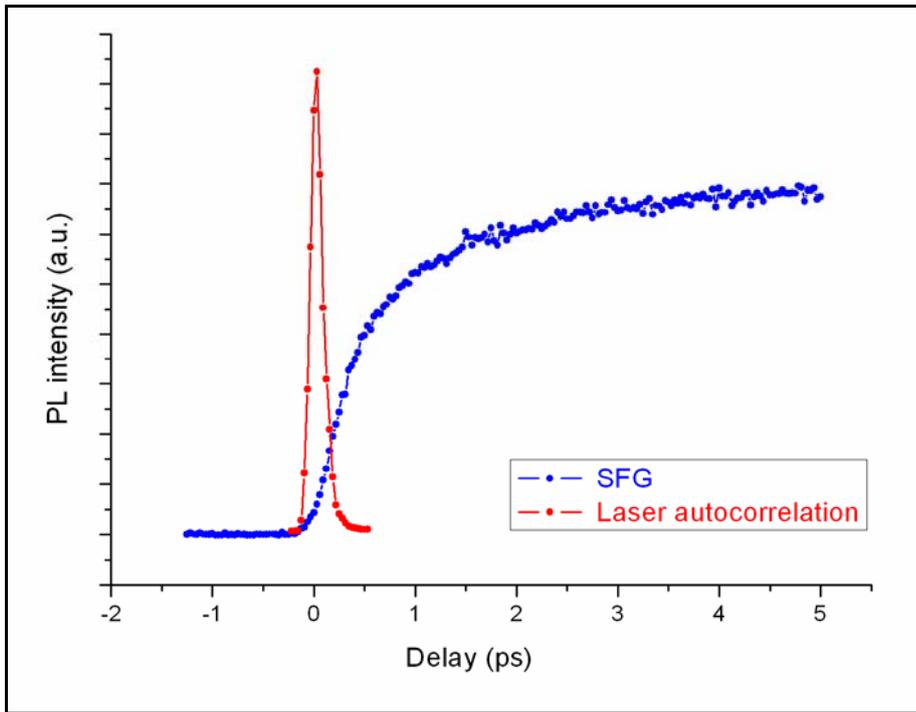


圖 3-3 時間零點與時間解析光譜圖

對量子點進行初始狀態的量測及時間解析，必須要在相位還沒亂掉的時間內作動態的操控，所以雷射脈衝不能太長。但，把雷射脈衝縮短提高解析度，意味著雷射光的能譜變寬，有可能會喪失掉量測單一能階的條件。假設雷射脈衝的時間寬度 Δt 受到下列條件所圍： $\frac{\hbar}{\Delta \varepsilon} < \Delta t < \frac{1}{\gamma}$ ， $\Delta \varepsilon$ 為待測能階間最小能距， γ 代表相位的散射率。相位相干的維持時間 γ^{-1} 大約是 30ps，這兩數目界定了雷射脈衝寬度的範圍。[12]

過去在文獻裡曾有人提出了組合脈衝的概念，在一個雷射波中混合兩個脈衝，藉著調整脈衝頻率、兩脈衝的時差、和脈衝的個別寬度等等可調變的因子，可以在上式的限制下，對量子演化的操控達到更高的可靠度。[13][14]

3-2-3 Up-conversion光學原理

Up-conversion是利用非線性光學合頻(SFG)的理論，將螢光及另一道雷射光 (gating pulse)，經非線性晶體轉換成頻率為前兩者頻率之合的光束。假設有兩道光頻率分別為 ω_1 (PL光頻率)、 ω_2 (雷射光頻率)入射至非線性晶體，產生SFG的頻率為 ω_3 (實驗上光譜儀偵測的訊號)。若固定雷射光頻率，則PL光頻率和SFG頻率即呈一對一關係，藉由對特定合頻訊號量測來探知不同頻率的螢光；不同頻率的螢光代表不同能階躍遷的光子能量。

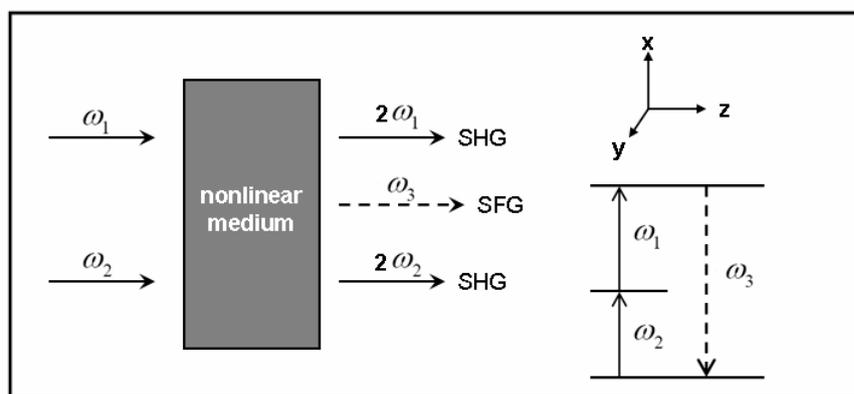


圖3-4 非線性晶體內合頻及倍頻原理

以上對於入射光波與非線性晶體的相對關係，純粹描述光子在能階之間躍遷的狀態。然而在實際架設upconversion光路時，光束入射非線性晶體的角度是致關重要的環節，若光束入射晶體角度錯誤，將無法產生訊號，抑或產生非我們所欲量測的訊號。

接著討論光在非線性材料(晶體)中傳播的行為，雖然一般電磁學及電磁波簡介的書籍總會假設電磁波傳播的介質是線性的，無論電磁波的振幅大小，其折射率(介電係數和介磁係數的函數)總是不會改變。這是由於線性微分方程式

較為容易，然而介電係數代表的是電場(E)和極化強度(P)之間的比例關係，如同彈簧的虎克定律一般，當外力達到一定強度時，彈簧的形變量和外力就不再成正比；相同地，當電場強度大到某一個程度時，極化強度和電場就不再是正比關係，如此介電係數在電磁波的電場振幅較大和較小時的值必然不同，這就表示這個傳播電磁波的介質對電磁波振幅的反應是非線性的。換句話說，折射率將會是電磁波振幅的一個函數。在光學上可以這麼說，折射率不是一個定值而是一個光強度的函數。但如此一來，要解一個電磁波或光波在介質中的行為就變得複雜的多了，而且在不同材料介質中，折射率和電場關係也不儘相同，往往因此無法找到一個電磁波或光波在非線性材料中傳播的通解。

3-2-4 合頻訊號及二階諧波的數學推導

以下利用電磁學理論、非線性光學理論，對合頻(SFG)及二階諧波(SHG)作簡單的數學推導及解釋：無論雷射或螢光都是以電磁波的形式在介質中傳遞，必須遵守Maxwell方程式，為方便推導，以下式子用高斯單位(gaussian units)表示。

$$\text{Maxwell方程式(一般式)} : \begin{cases} \nabla \cdot \vec{E} = 4\pi\rho \\ \nabla \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \nabla \cdot \vec{B} = 0 \\ \nabla \times \vec{B} = \frac{4\pi}{c} \vec{J} + \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \end{cases}$$

實驗室裡，通常討論的磁場一般是指 \vec{H} (magnetic field) 而不是 \vec{B} (flux density or induction)。當我們在金屬線圈內通電流(自由電子)產生磁場，並針對某材料作

量測時，儀器上讀到的值是 \vec{H} ，因材料外 $\vec{B} = \vec{H}$ ，但材料內 $\vec{B} = \vec{H} + 4\pi\vec{M}$ 無法直接探知 \vec{M} (magnetic dipole moment per unit volume) 的值，所以將式子改寫。

$$\text{Maxwell 方程式(材料內): } \begin{cases} \vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 4\pi\rho_f \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{H} = 0 \\ \vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{4\pi}{c} \vec{J}_f + \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \end{cases}$$

假設非線性晶體內沒有自由電荷 $\vec{J}_f = 0$ & $\rho_f = 0$ ，磁化率 χ_m 為零

$$\vec{B} = \vec{H} + 4\pi\vec{M} = (1 + \chi_m)\vec{H} = \vec{H}$$

$$\text{Maxwell 方程式(晶體內): } \begin{cases} \vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0 \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{H} = 0 \\ \vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \end{cases}$$

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) = \vec{\nabla} \times \left(-\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}\right) = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} (\vec{\nabla} \times \vec{H}) = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2},$$

$$\vec{D} \text{ (electric displacement), } \vec{D} \equiv \vec{E} + 4\pi\vec{P}$$

將光波在晶體內產生的電場視為與波行進方向平行的均勻電場 $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0$

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) = \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \nabla^2 \vec{E} = -\nabla^2 \vec{E},$$

$$-\nabla^2 \vec{E} = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\vec{E} + 4\pi\vec{P}),$$

\vec{P} (dipole moment per unit volume or polarization)

$$-\nabla^2 \vec{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = -\frac{4\pi}{c^2} \vec{P} \quad [15]$$

接著考慮光學的非線性效應，將 \vec{P} 拆為線性項 \vec{P}^L 與非線性項 \vec{P}^{NL} ，因為合頻SFG

和倍頻SHG都屬於非線性項的範疇。假定極化方向 \vec{P} 與電場方向平行

$$\nabla^2 \vec{E} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} + \frac{4\pi}{c^2} \vec{P}^{NL}$$

$$\begin{aligned}\bar{P} &= \bar{P}^L + \bar{P}^{NL} = \bar{P}^{(\omega)}(t) + \bar{P}^{(2\omega)}(t) + \bar{P}^{(3\omega)}(t) + \bar{P}^{(4\omega)}(t) + \dots \\ &= \chi^{(1)}E(t) + \chi^{(2)}E^2(t) + \chi^{(3)}E^3(t) + \chi^{(4)}E^4(t) + \dots\end{aligned}\quad \chi \text{ (susceptibility 磁化率)}$$

將系統限定在三道沿z軸傳播的平面波，頻率分別為 ω_1 (雷射), ω_2 (螢光), ω_3

討論二階項

$$\bar{P}_i^{(2\omega)} = \sum_{ijk=x,y,z} (2 - \delta_{jk}) d_{ijk}^{2\omega} \bar{E}_j^{(\omega)} \bar{E}_k^{(\omega)}$$

直接解出上式最直覺的方法就是引入張量(tensor)的概念。暫時避開冗長的矩陣

表示式，假設三道光皆沿z軸傳播， χ 符合對稱性的條件 $d_{ijk}^{2\omega} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{ijk})$

$$\bar{P}^{(2\omega)}(t) = \sum_{i,j=1}^3 \frac{1}{2} \chi^{(2)} \bar{E}_z^{(\omega_i)}(t) \bar{E}_z^{(\omega_j)}(t)$$

$$\bar{E}_z^{(\omega)} = \sum_{i=1}^3 \bar{E}_i(z) \exp[i(k_i z - \omega_i t)] + c.c. \quad (c.c. \text{ 為複數項})$$

在非線性晶體外只觀察到 \bar{E} (光波傳遞)，在晶體內產生作用的則包括 \bar{P}

$$\text{雷射二階諧波 (SHG)} \quad \bar{P}^{(2\omega_1)} = \frac{1}{2} \chi^{(2)} \bar{E}_z^{(\omega_1)} \bar{E}_z^{(\omega_1)}$$

$$\text{螢光二階諧波 (SHG)} \quad \bar{P}^{(2\omega_2)} = \frac{1}{2} \chi^{(2)} \bar{E}_z^{(\omega_2)} \bar{E}_z^{(\omega_2)}$$

$$\text{螢光、雷射合頻 (SFG)} \quad \bar{P}^{(\omega_1+\omega_2)} = \chi^{(2)} \bar{E}_z^{(\omega_1)} \bar{E}_z^{(\omega_2)}$$

$$\text{螢光、雷射合頻 (DFG)} \quad \bar{P}^{(\omega_1-\omega_2)} = \chi^{(2)} \bar{E}_z^{(\omega_1)} \bar{E}_z^{(\omega_2)*}$$

針對螢光、雷射討論其在晶體內合頻(ω_3)的效率

$$\bar{\nabla}^2 \bar{E} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \bar{E} + \frac{4\pi}{c^2} \bar{P}^{NL} \Rightarrow \frac{d^2 \bar{E}^{(\omega_3)}}{dz^2} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \bar{E}^{(\omega_3)}}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c^2} \bar{P}^{(\omega_3)}$$

設 $\Delta k \equiv k_3 - (k_1 + k_2)$ ，因討論非線性效應，所以允許 $k_3 \neq (k_1 + k_2)$ 違背動量守恆的項

存在推導過程中

$$\frac{d^2 E_3(z)}{dz^2} + 2ik_3 \frac{dE_3(z)}{dz} - k^2 E_3^2(z) = -\frac{\omega_3^2}{c^2} E_3^2(z) + \frac{4\pi}{c^2} [E_1(z)E_2(z)] \exp[i(\Delta k)z]$$

先解出電場 \bar{E} 的值，再藉由 \bar{E} 與 \bar{P} 的對應關係可導出

$$\eta_{SFG} = (const.) \frac{\omega_1 \omega_2 d_{eff}^2 L^2}{n_1 n_2 n_3} \cdot \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2} \cdot \frac{P}{A}$$

假設產生合頻過程雷射沒有消耗，螢光光束大小亦不超出雷射光束範圍

$$\eta_{SFG} \propto \frac{\omega_1 \omega_2 d_{eff}^2 L^2}{n_1 n_2 n_3} \cdot \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2}, \quad L \text{ 晶體厚度,}$$

d_{eff} (effective nonlinear coefficient of the crystal)

n_1, n_2, n_3 代表 ω_1 (螢光), ω_2 (雷射), ω_3 (合頻) 入射晶體 [16]

實驗設計上為達到較好的SFG訊號，希望 $\Delta k \equiv k_3 - (k_1 + k_2) = 0$ ，當 $\Delta k = 0$ 時稱為相位匹配，SFG強度最高。

從實際的幾何空間檢視光路，代表螢光、雷射、合頻訊號的 k_1, k_2, k_3 ，並非全部沿著z軸傳播，在非線性晶體外側。假設可以很容易的將雷射、螢光視為直接透射過晶體而描繪出晶體右側的光路，那麼找到對應的 k_1, k_2, k_3 關係和達到 $\Delta k = 0$ 的條件，乍看之下似乎不難。

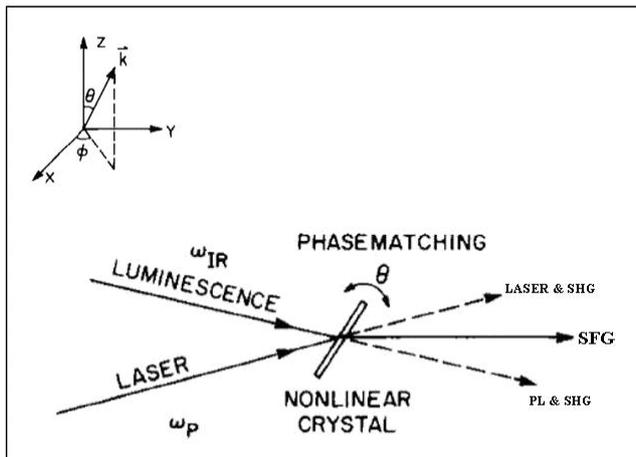


圖3-5 非線性晶體對應入射光角度

然而，考慮雷射、螢光透射晶體因 n_1, n_2 而產生的不同折射角，想準確的推算產生最強SFG訊號時，三道光(Laser、Luminescence、SFG)的相對夾角，首先

必須修正以上所有與“三道沿z軸傳播的平面波”相關的假設，也因此不得不在推導過程引入張量的概念，再一步步的簡化矩陣中的縮減極化係數張量 $d_{ijk}^{2\omega}$ ……，

或選擇較省腦力的方法，先查閱相關的數據，概略的推測適當的角度，再手動

調出最佳的 θ 角。晶體特性：在介質中 $k_i = \frac{2\pi}{\lambda_i} = \frac{2\pi/t}{\lambda_i/t} = \frac{\omega_i}{v_i} = \frac{n_i \omega_i}{c}$ (c：光速)，欲

達到 $\Delta k = 0$ 相位匹配的條件，必須符合關係式 $n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 = n_3 \omega_3 \Rightarrow \frac{n_1}{\lambda_1} + \frac{n_2}{\lambda_2} = \frac{n_3}{\lambda_3}$ 。這直

覺的違反了能量守恆 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 \Rightarrow \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} = \frac{1}{\lambda_3}$ ，因不同波長(頻率)的光對應不同

的折射率n。在雙折射晶體(Birefringent crystal)和單軸晶體(Uniaxial crystal)等某

些非線性晶體中，折射率n會隨著光的入射角度而改變。在本實驗中提到的

up-conversion系統所使用的晶體就是屬於單軸晶體。現在有一道沿著z軸方向前

進的光，在單軸晶體中可定義出 $n_x = n_y = n_o$ (n_o :ordinary index)、 $n_z = n_e$

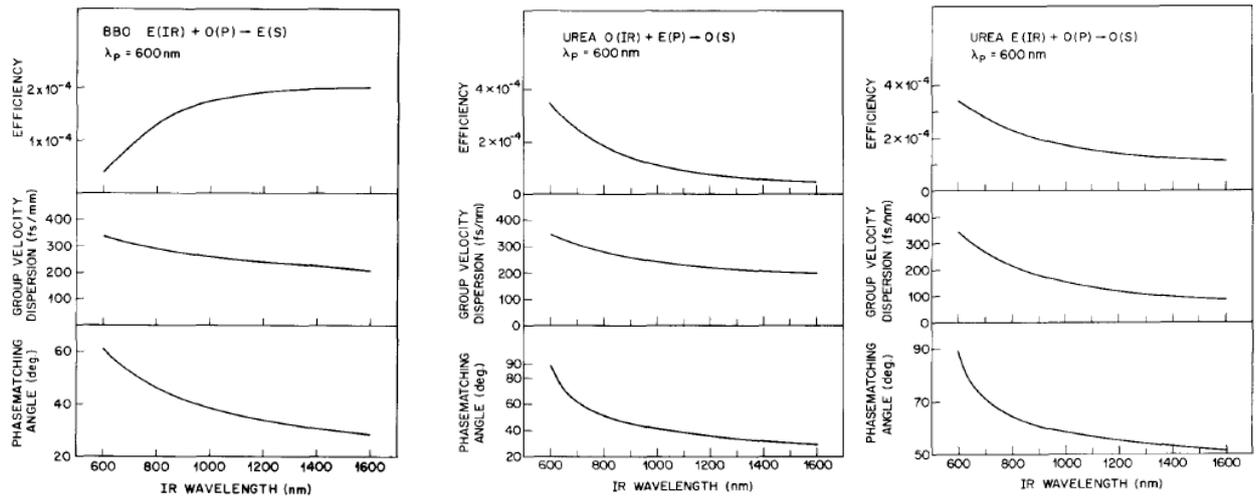
(n_e :extraordinary index)兩個折射率及角度的關係式 $\frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} = \frac{1}{n_i^2}$ 。改變 θ 角

達到相位匹配的條件為：

晶體類型 相位匹配	正型光軸 ($n_e > n_o$)	負型光軸 ($n_o > n_e$)
Type-I	$n_1^e \omega_1 + n_2^e \omega_2 = n_3^o \omega_3$	$n_1^o \omega_1 + n_2^o \omega_2 = n_3^e \omega_3$
Type-II	$n_1^o \omega_1 + n_2^e \omega_2 = n_3^o \omega_3$	$n_1^e \omega_1 + n_2^o \omega_2 = n_3^e \omega_3$

表3-1 型態I、型態II非線性晶體光軸與入射光極化方向關係

n_1, n_2, n_3 分別代表 ω_1 (螢光), ω_2 (雷射), ω_3 (合頻)對應晶體的折射率[17]。



BBO type II upconversion, $E(IR) + O(P) \rightarrow E(S)$. Urea type II upconversion, $O(IR) + E(P) \rightarrow O(S)$. Urea type II upconversion, $E(IR) + O(P) \rightarrow O(S)$.

圖3-6 BBO晶體產生合頻訊號效率

根據上表的數據，螢光(IR)與雷射(P：偵測光束)產生合頻訊號的效率並不高($\sim 10^{-4}$)。

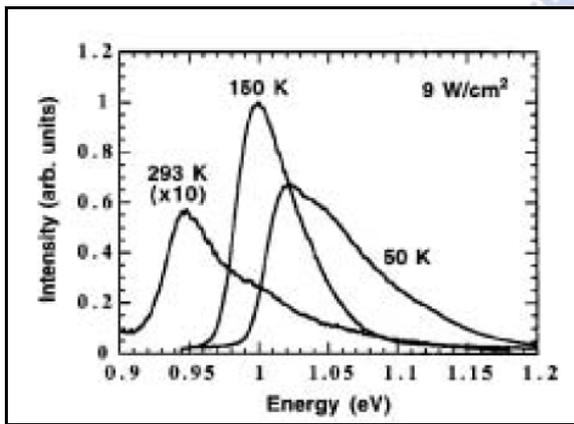


圖 3-7 量子點放光波長、強度與溫度關係[18]

室溫下研究量子點必須對樣品光性嚴格要求。並考慮樣品發螢光強度與溫度的相關性：從 50 K 到 150 K 的發光強度接近，但超過 150 K 到 300 K 時衰減約一個數量級，一般三—五族量子點在室溫中發光性質比低溫下差。

第四章 實驗介紹及樣品說明

4-1 電子自旋弛豫時間解析光譜實驗架構

四分之一波片：光通過四分之一波片時，光波的電場偏振與快軸平行時傳播速度較快，而與快軸垂直(與慢軸平行)的傳播速度較慢。偏振方向相互垂直的兩束光或同一束光的兩個分量，在通過此光學元件時產生相位差若恰等於四分之一波長時，稱此光學元件為四分之一波片(quarter-wave plate)。四分之一波片是利用雙折射光學元件之厚度來控制，並且二個電場振動方向產生之相位差與通過此元件之光波波長有關。

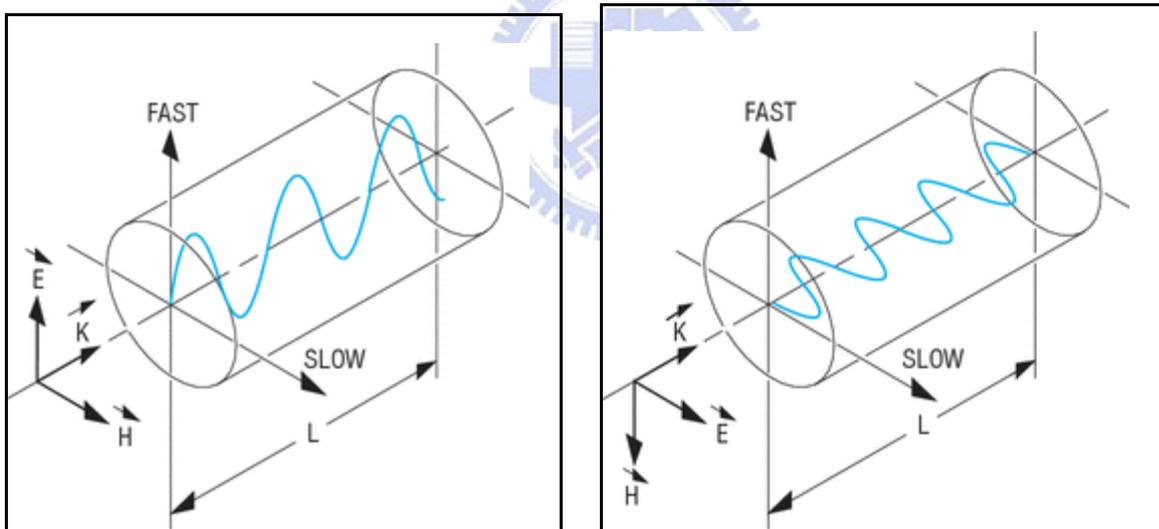


圖 4-1 晶體快軸與慢軸對光波傳遞的影響[19]

以線偏振光入射四分之一波片，當光波的電場極化方向和晶體的光軸面(快軸)成 θ ($\theta > 0^\circ$)角，透射光的極化方向為橢圓偏振。當 $\theta = 45^\circ$ (or $\frac{\pi}{4}$)時，透射的光為圓偏振光。調整入射雷射極化方向與晶體快軸的夾角，可以產生帶有角動量 σ^\pm 的不同光子激發樣品。

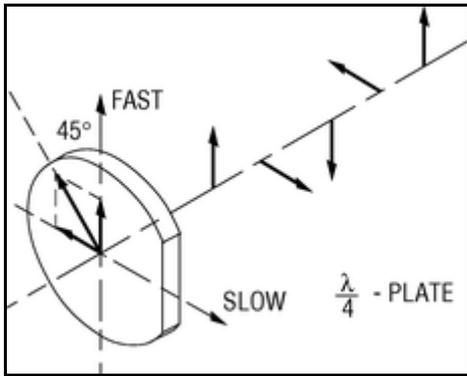


圖 4-2 四分之一波片極化線偏振光為圓偏振光[19]

承襲 Up-conversion 實驗架構，確定雷射波長、光路、非線性晶體角度、合頻訊號為最佳化，並完成時間解析光譜的測試。

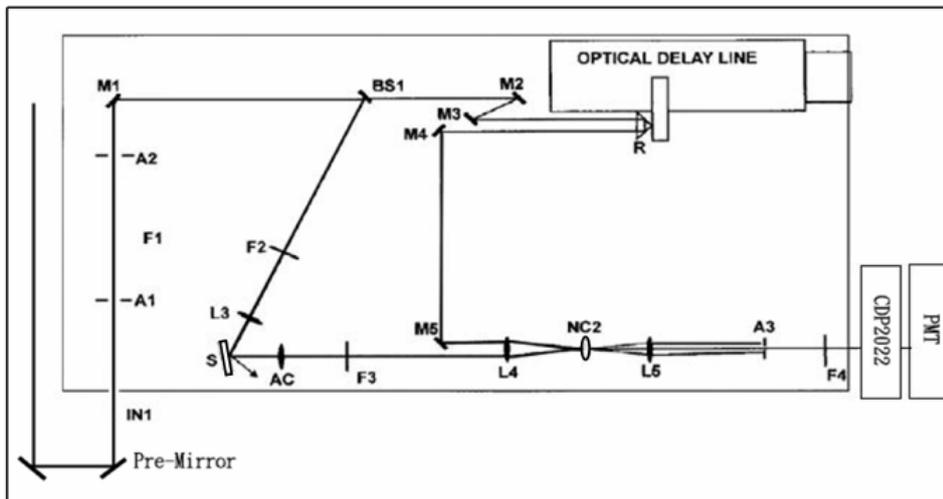


圖 4-3 原始 up-conversion 系統光路圖

在分光鏡 BS1 和聚焦鏡 L3 之間以及收光鏡 AC 和聚焦鏡 L4 之間各別架設一具四分之一波片 QWP1 和 QWP2 (Quarter-Wave Plate, QWP)。

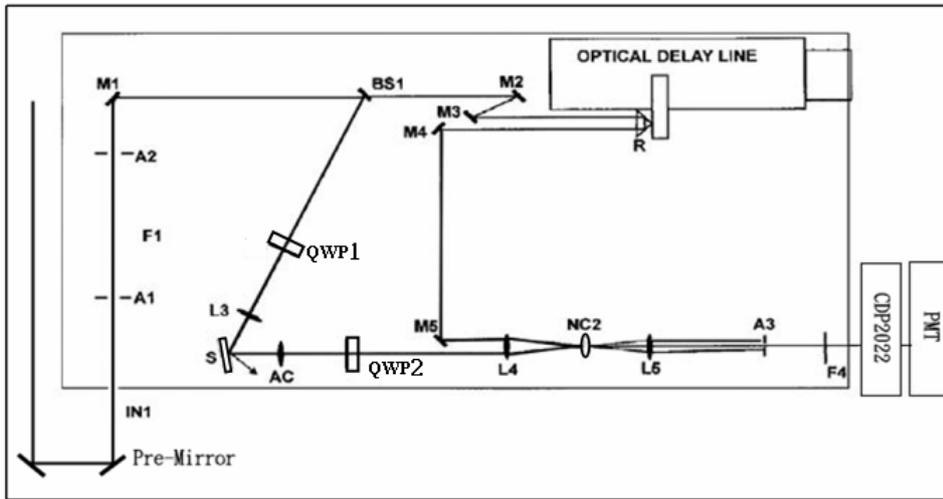


圖 4-4 在原始 up-conversion 系統光路上架設偏光鏡

QWP1 將雷射(pump beam laser)由原來線性偏振極化為圓偏振，QWP2 則用以檢測樣品散射螢光(PL)左旋及右旋成分。

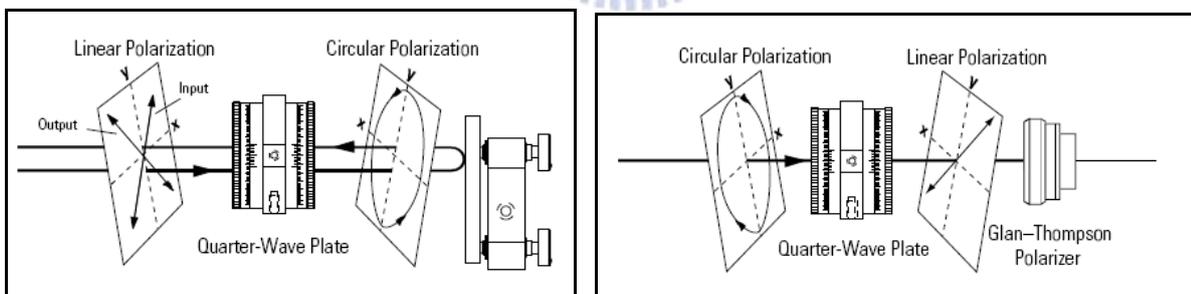


圖 4-5 線偏振光與圓偏振光對應四分之一波片關係圖[19]

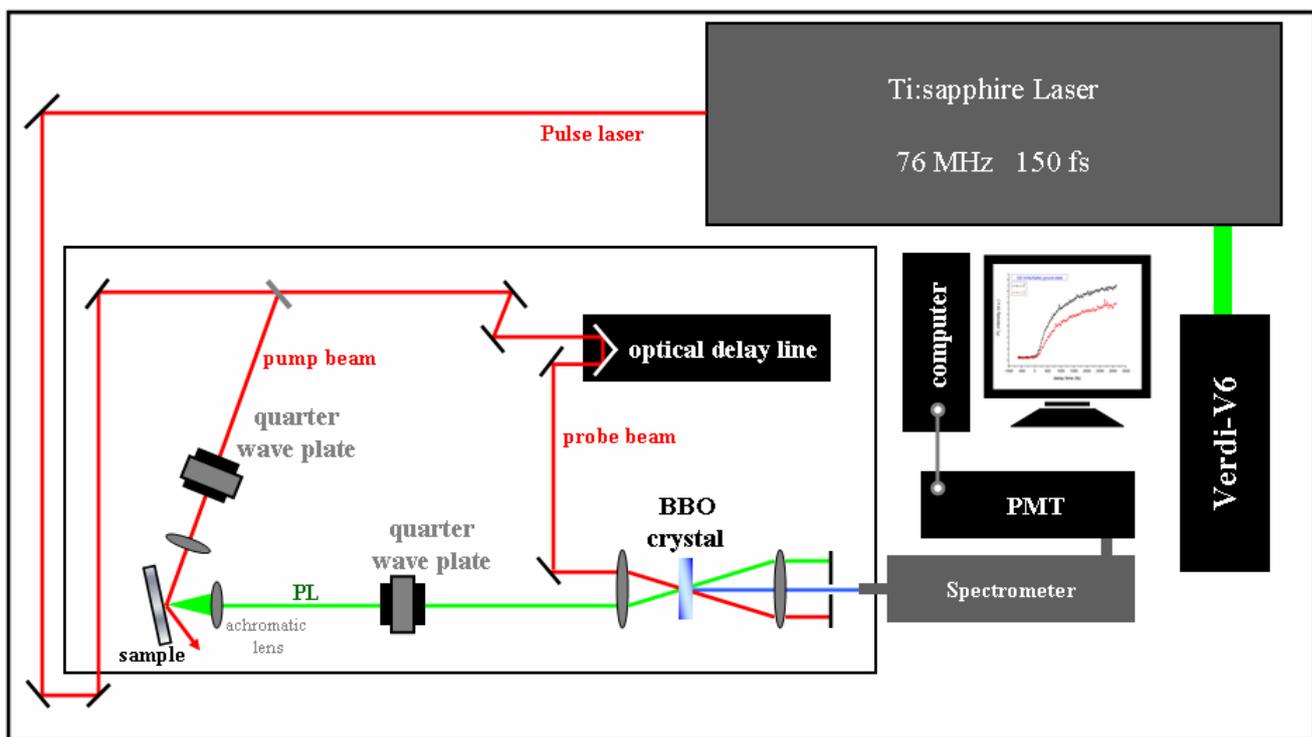
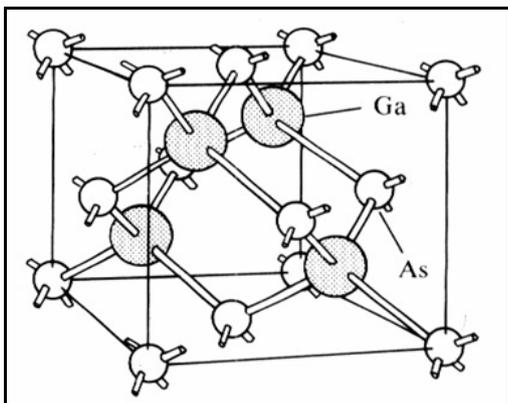


圖 4-6 電子自旋時間解析系統

4-2 樣品材料及特性

近年來三五族半導體研究不斷開發、成長，而無線通訊產業是最主要的應用領域，起因於市場對高頻方面的需求，例如人造衛星與行動電話中的快速電晶體、光纖中傳遞訊息的雷射二極體。但，矽基材只適用低於 1GHz 的頻率，而砷化鎵除了擁有可大批量產的優勢外，低消耗功率、低環境影響度也是砷化鎵成為最主要三五族半導體材料的原因。



砷化鎵、砷化銦、磷化鎵、磷化銦.....等晶格屬於閃鋅(Zinc Blende)結構

將不同材料的半導體薄膜依先後次序沉積在同一基座上，稱之為半導體異質結構。若某中間層能階較低，載子容易被侷限在只有幾十埃($\text{\AA} = 10^{-10} m$)的厚度裡。在如此小的空間內載子特性深受量子效應的影響，例如基態能量增加、能階量子化、能態密度改變.....等。

半導體內自由電子主要是由外加雜質所貢獻，因此在一般的半導體材料中自由電子與雜質碰撞大幅減低其行動能力。然而在異質結構中，可將雜質加在中間層外的夾層中，雜質所貢獻的電子有機會掉到中間層。藉由自由電子與雜質在幾何空間分開，電子的行動不會因與雜質碰撞而受限，因此大大增加了其遷移率(mobility)，提供其成為高速元件的要素。



4-2-1 樣品結構

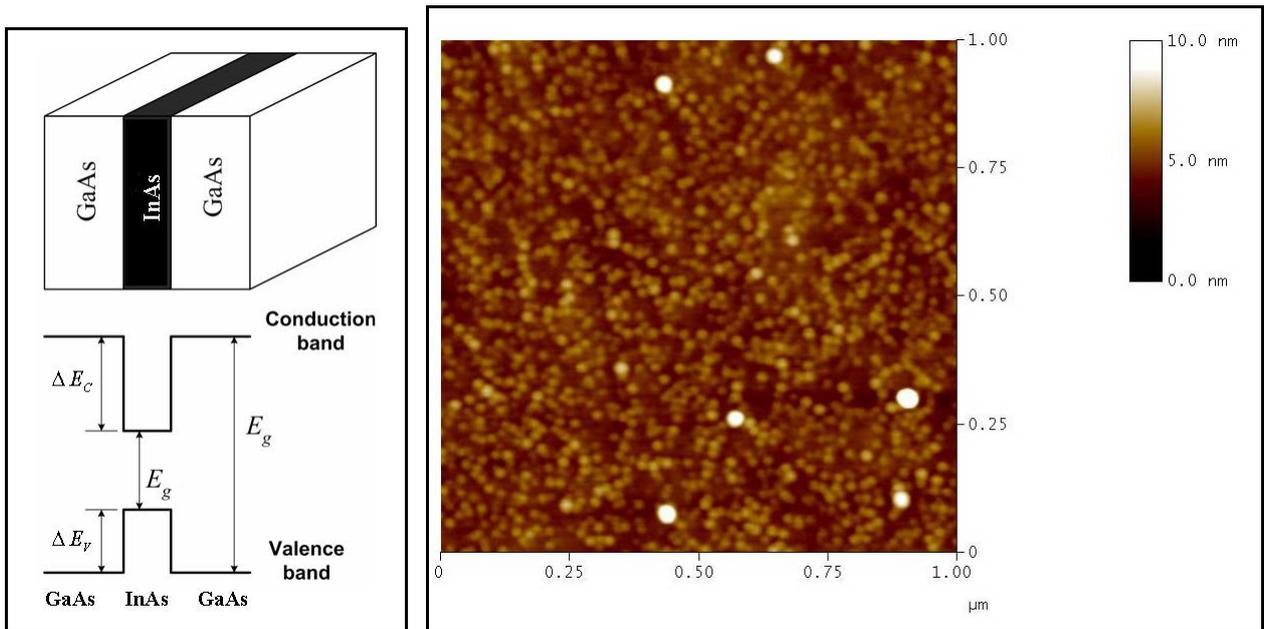


圖 4-7 樣品 InAs/GaAs 量子點 AFM 圖-I

量子點密度： $8.5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$

量子點尺寸：高 $2 \pm 0.2 \text{ nm}$ ，直徑 $20 \pm 3.6 \text{ nm}$

大顆量子點尺寸：高 $\sim 6.5 \text{ nm}$ ，直徑 $\sim 30 \text{ nm}$

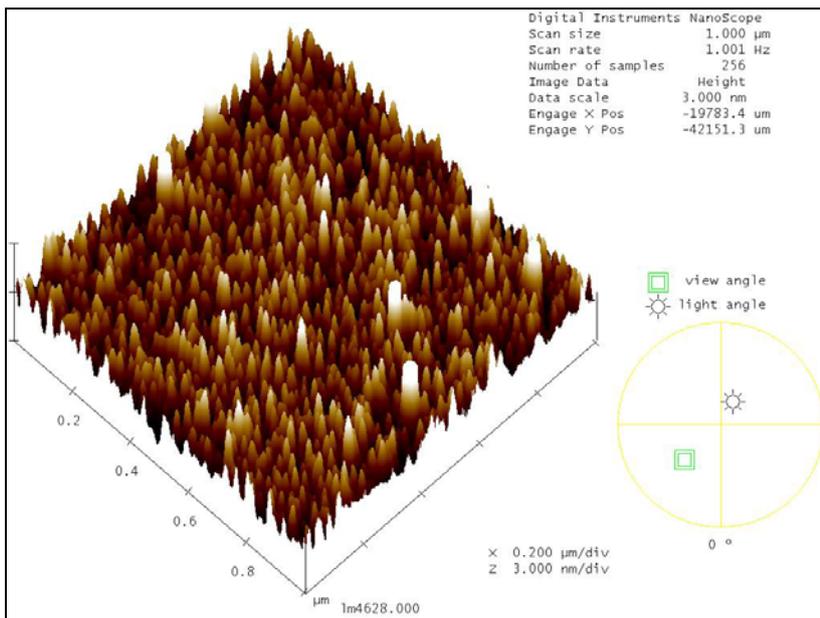


圖 4-8 樣品 InAs/GaAs 量子點 AFM 圖-II

實驗中的樣品屬於自聚性量子點，使用分子束磊晶(MBE)技術來成長。在 GaAs 的基板上成長 InAs 的量子點。其原理是利用兩材料間晶格常數具有很高 的不匹配性與較低的界面能，磊晶初期 InAs 會以層狀結構方式成長，若磊晶厚 度高於張力所能承受的臨界厚度，薄膜會破裂而產生缺陷。

SK(Stranski-Krastanov)模式自聚性量子點的成長是在薄膜破裂前，島狀物 剛形成時將磊晶的成長停止。以 SK 成長的量子點內無缺陷，因此可得到較佳 的光電特性。

異質界面的能帶分佈以不同的相對關係，可細分為三類。用來作自旋研究 的 InAs/GaAs 量子點樣品是屬於型態 I(type I)的異質結構。其它如 GaSb/GaAs 異質界面屬於型態 II 及 InAs/GaSb 異質界面屬於型態 III。

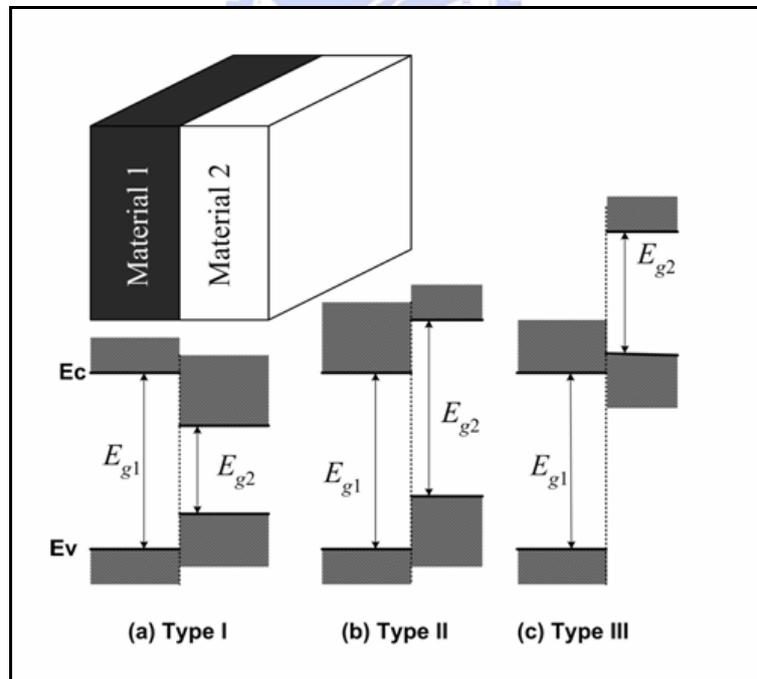


圖 4-9 半導體型態 I、型態 II、型態 III 異質界面

4-2-2 樣品之光學特性

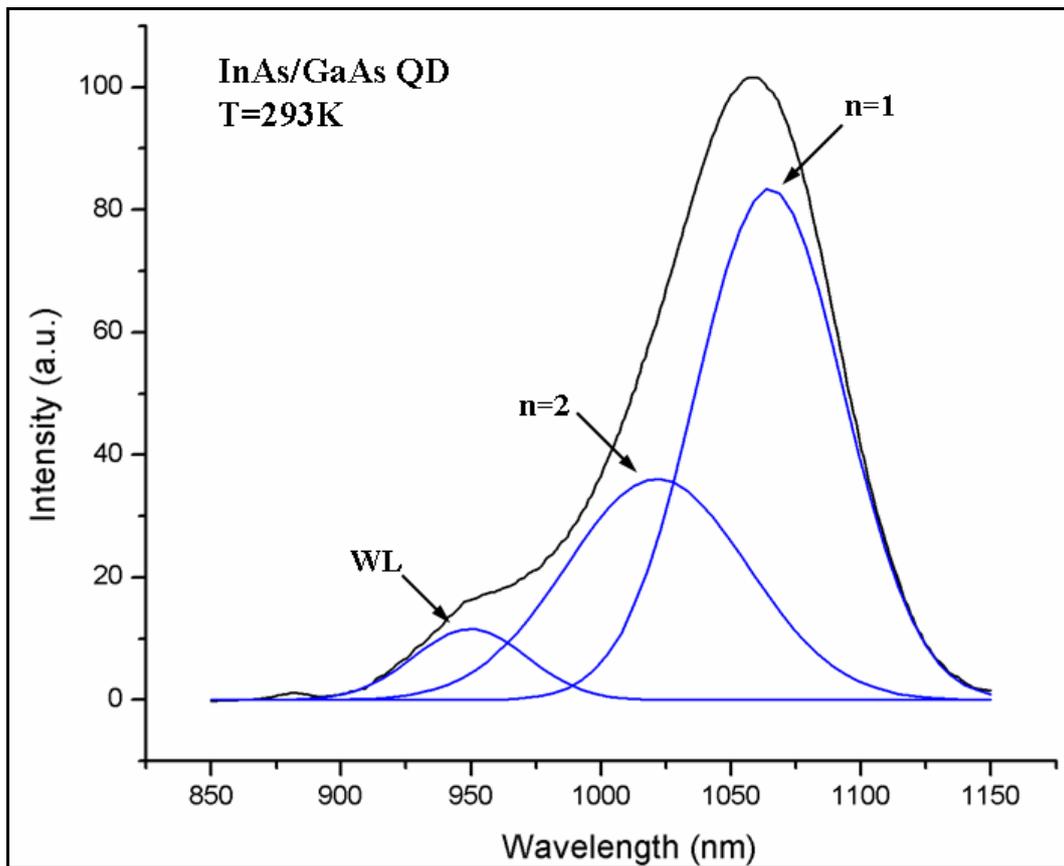


圖 4-10 室溫下，砷化銦/砷化鎵量子點螢光光譜

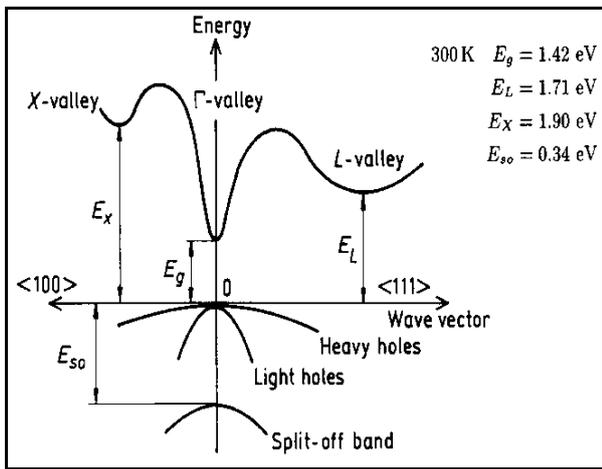


圖 4-11 砷化鎵能帶圖

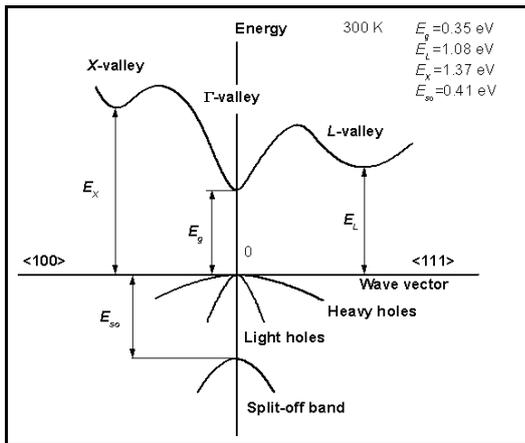


圖 4-12 砷化銦能帶圖

從光譜圖與三—五族半導體材料的能帶圖，可描繪出樣品裡量子點、溼潤層 (wetting layer) 和基材 (barrier) 異質介面間的能帶圖：

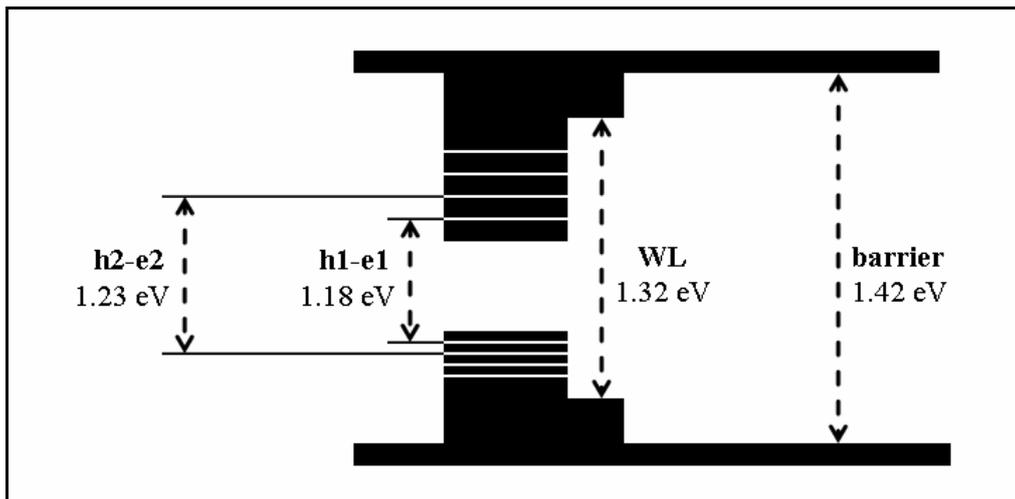


圖 4-13 砷化銦/砷化鎵量子點能帶結構

第五章 實驗結果與討論

5-1 數據分析

5-1-1 量子點大小與發光特性

比較成分相同不同尺寸的量子點放光特性：小尺寸量子點內載子受侷限效應影響發短波長的光。在低溫下量子點尺寸與發光效率並不明顯，但室溫下量測樣品螢光光譜可以發現小尺寸量子點發光特性較佳，但不容易觀察到激發態的訊號。在成長尺寸較小的量子點時，溼潤層的厚度較成長大尺寸量子時來的厚，載子由基材進入溼潤層所要克服的位能障較低，當量子點內激發態的載子回到基態，有足夠的多的激發態載子由溼潤層進入量子點內，因此提高了小尺寸量子點的放光的效率。

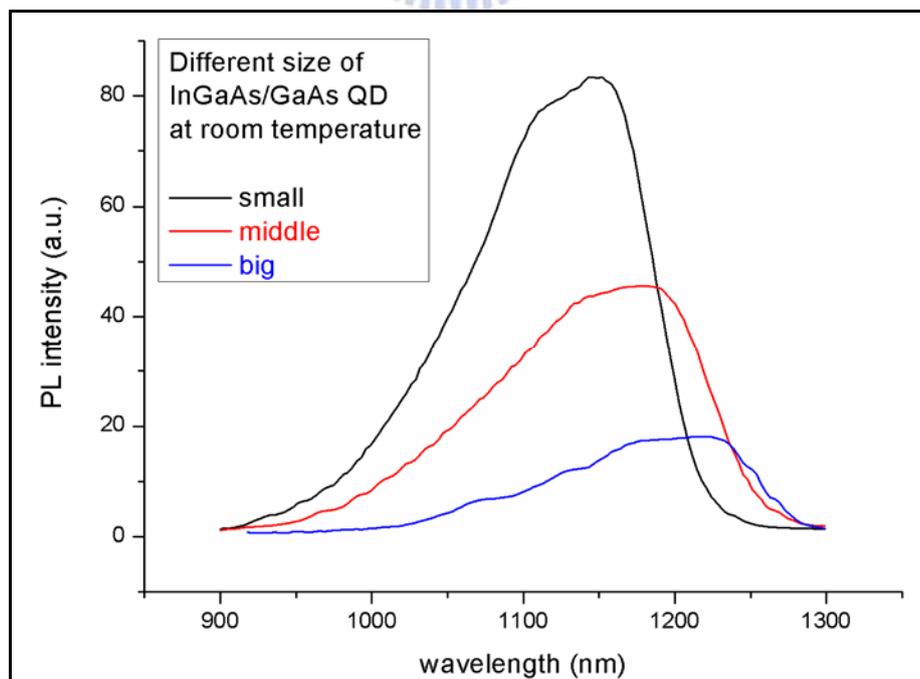


圖 5-1 室溫下不同尺寸量子點螢光光譜

除了量子點大小會影響放光波長，入射樣品的載子密度亦是另一重要因素，高密度的入射光使得量子點的溼潤層與基材(GaAs)的訊號逐漸明顯。

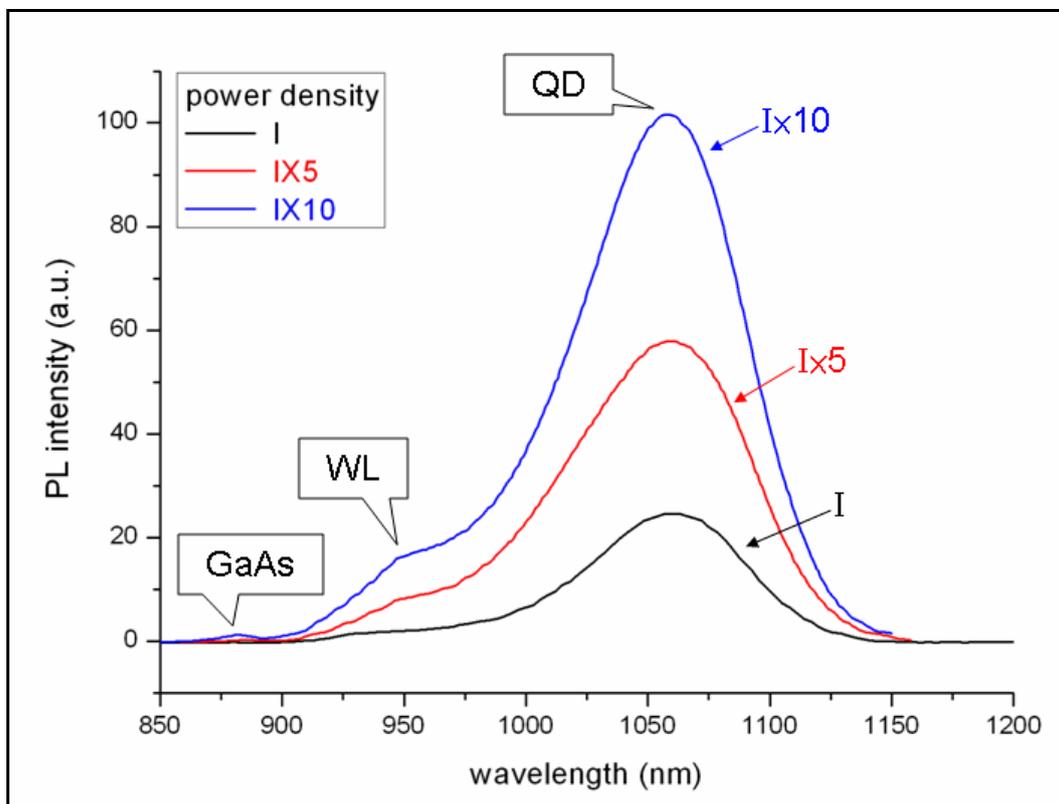


圖 5-2 室溫下不同激發載子密度對應自組裝量子點螢光光譜

5-1-2 型態 I 量子點內載子自旋

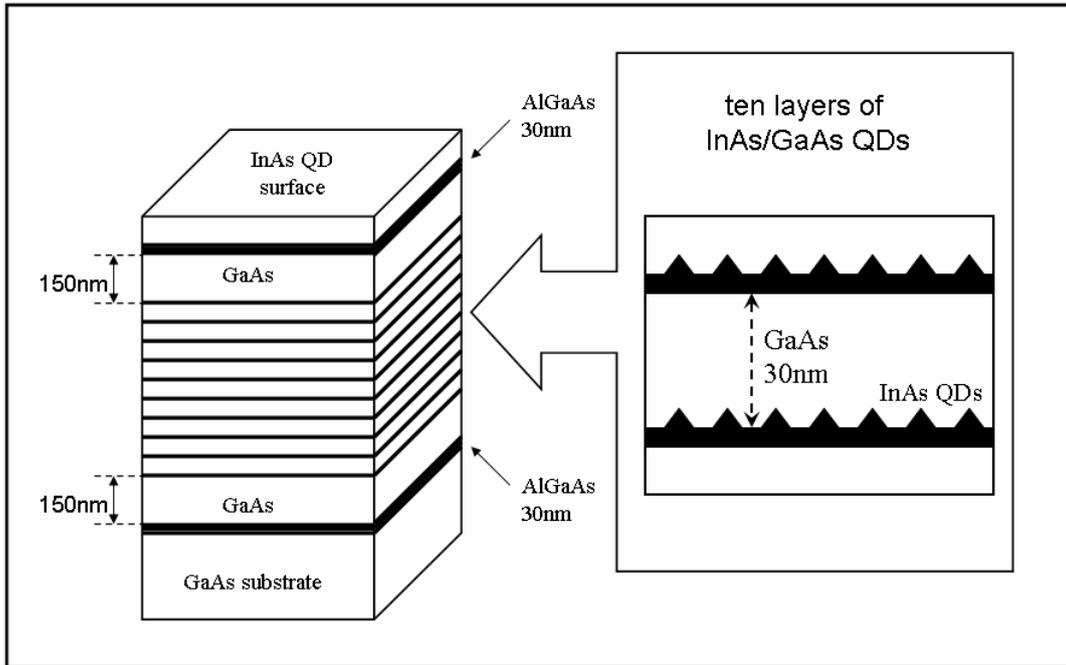


圖 5-3 十層砷化銦/砷化鎵量子點樣品結構(InAs: 2.4ML)

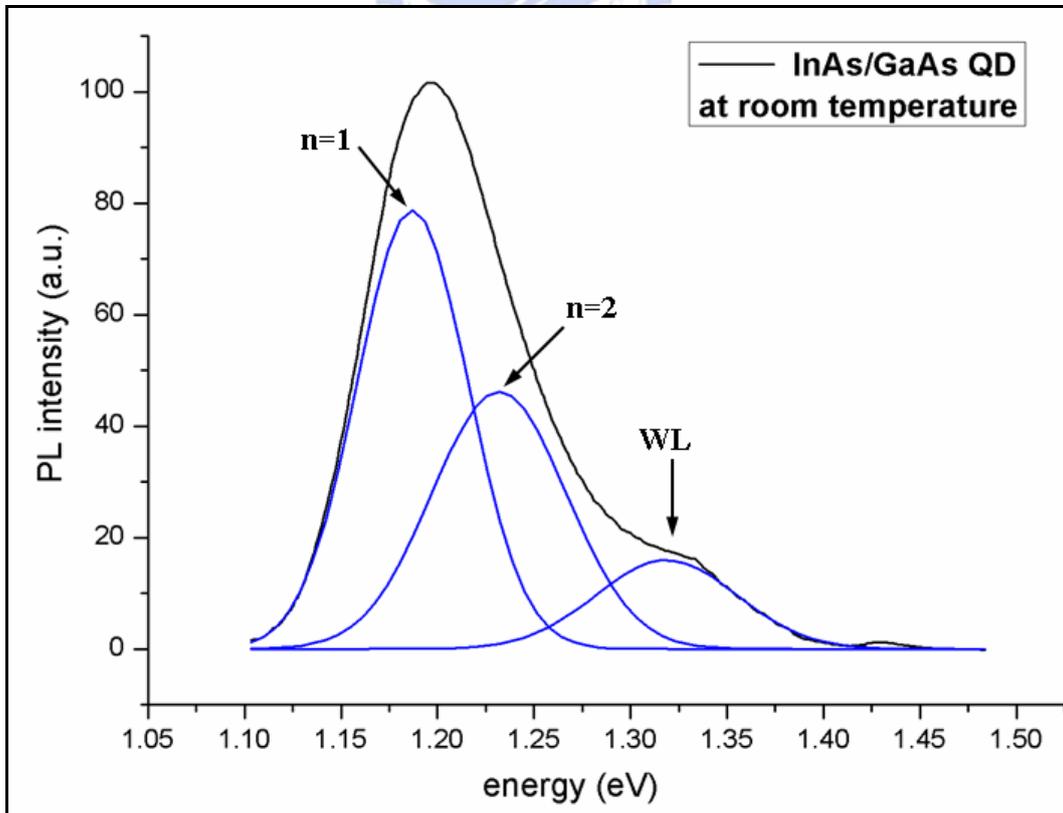


圖 5-4 室溫下，砷化銦/砷化鎵量子點螢光光譜

以 AlGaAs 量子井夾住量子點結構周圍的 GaAs，由於 AlGaAs 量子井在 GaAs 邊緣產生位能障，使激發的電子不必也難以填補 GaAs 外圍的懸空鍵 (dangling bond)，使價帶電子更有效的進入溼潤層與量子點內，室溫下提高樣品的發光效率尤其明顯。

以線性偏振的脈衝雷射激發砷化鎵塊材，分析在相同時間點上左旋光與右旋光強度：

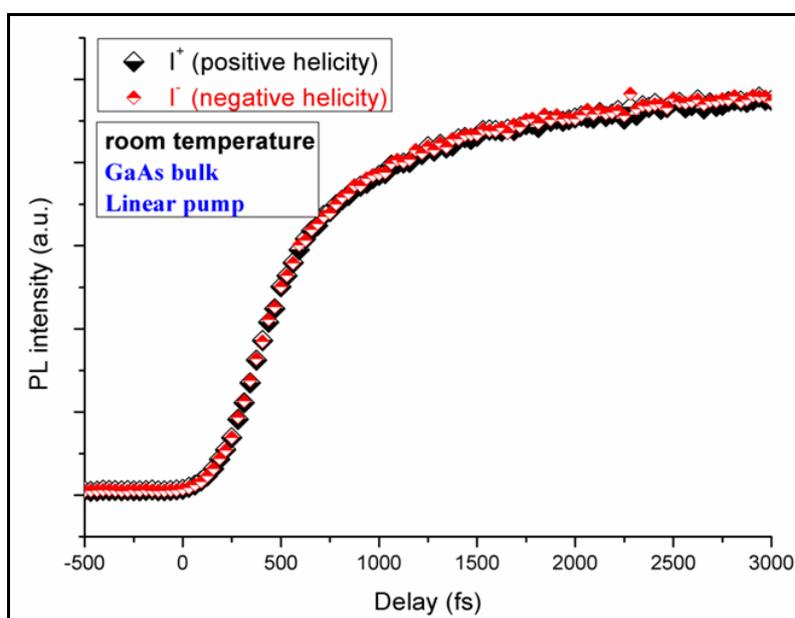


圖 5-5 線偏振脈衝雷射激發砷化鎵塊材情況下左旋光與右旋光強度

線性偏振光可以視為等量的左旋光與右旋光疊加，因此入射的光子群帶有等量的 σ^+ 光子與 σ^- 光子，而塊材所散射的螢光光子群中，理論上 σ^\pm 光子數亦相等。從實驗數據可以看到不同的時間點， I^+ 和 I^- 的強度幾乎相同。

把樣品換成 InAs/GaAs 的量子點、以 σ^+ 偏振光激發樣品，鎖定波長 1054nm (~1.18 eV) 量測基態的自旋載子躍遷過程。

與量測 GaAs 塊材的數據比對， I^+ 和 I^- 在時間零點(zero delay)之後立刻分裂成 I^+ 大於 I^- 的曲線。以下所有數據所提到的符號“ I^+ ”皆代表與原激發源 I^+ 帶有相同 σ^+ 訊號的光子。

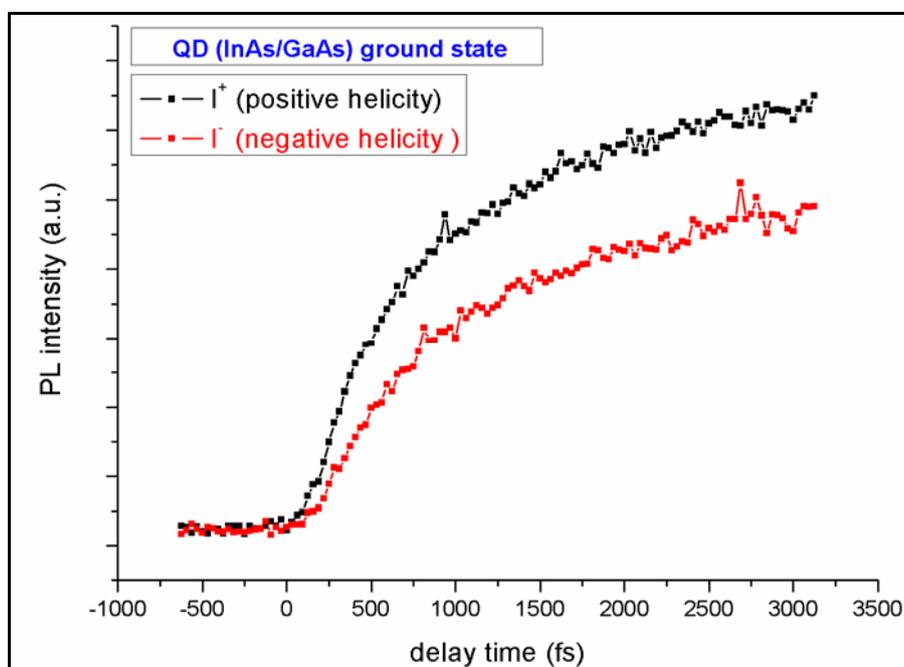


圖 5-6 右旋光脈衝雷射激發量子點左旋與右旋放光強度

分裂成 I^+ 、 I^- 兩曲線代表自旋向上 (spin up) 與自旋向下 (spin down) 的載子數目不相等。大約在 300ps 之後，自旋載子造成的時間解析光譜分裂逐漸重疊，自旋向上、向下的載子數目趨於平衡。

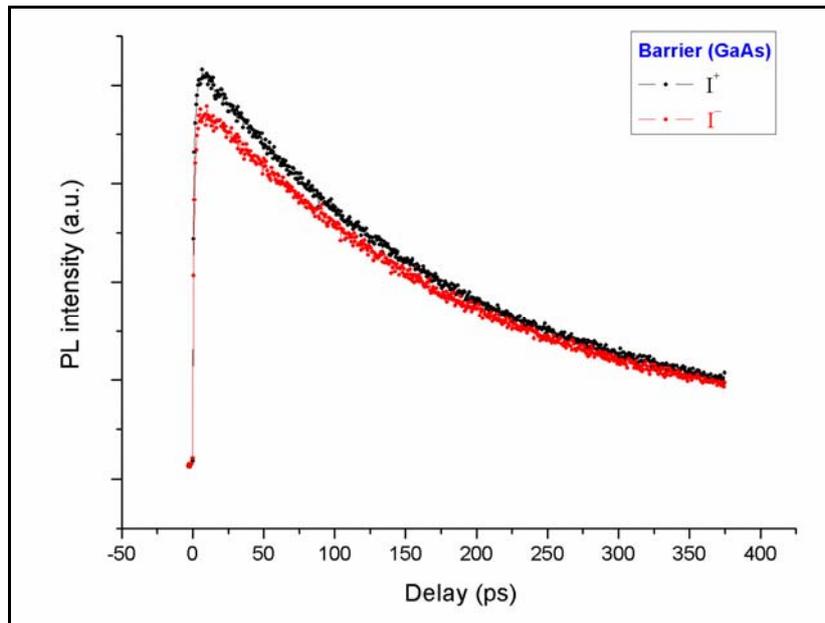


圖 5-7 右旋光脈衝雷射激發量子點樣品左旋與右旋放光強度

以自旋極化率的公式 $P = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} \approx \frac{\sigma^+ - \sigma^-}{\sigma^+ + \sigma^-} = \rho$ 處理 I^+ 、 I^- 分裂的數據：

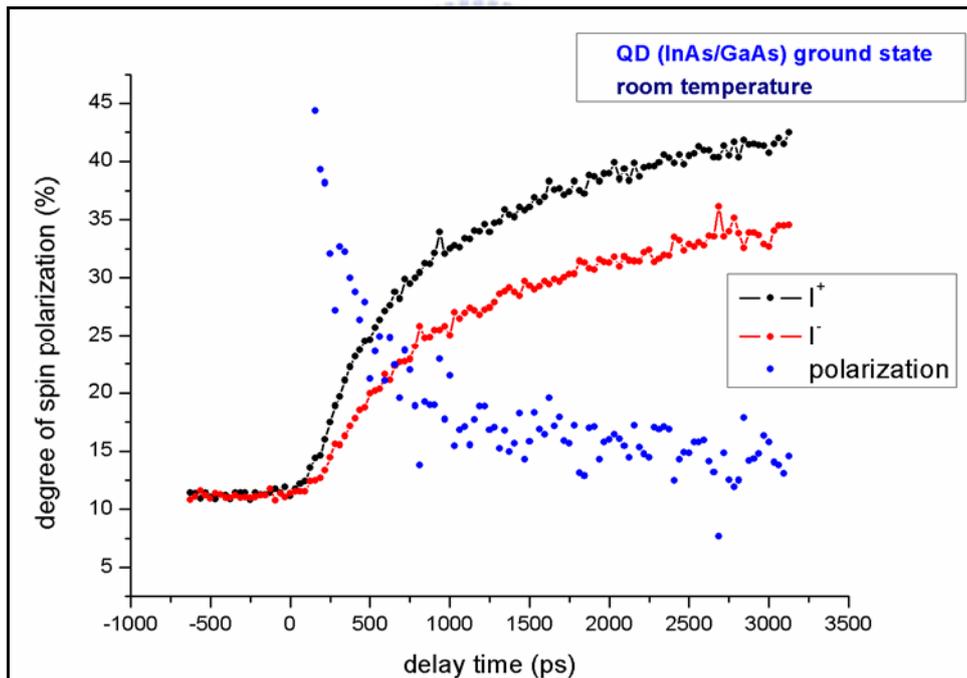


圖 5-8 將左旋光、右旋光分裂轉為自旋極化率

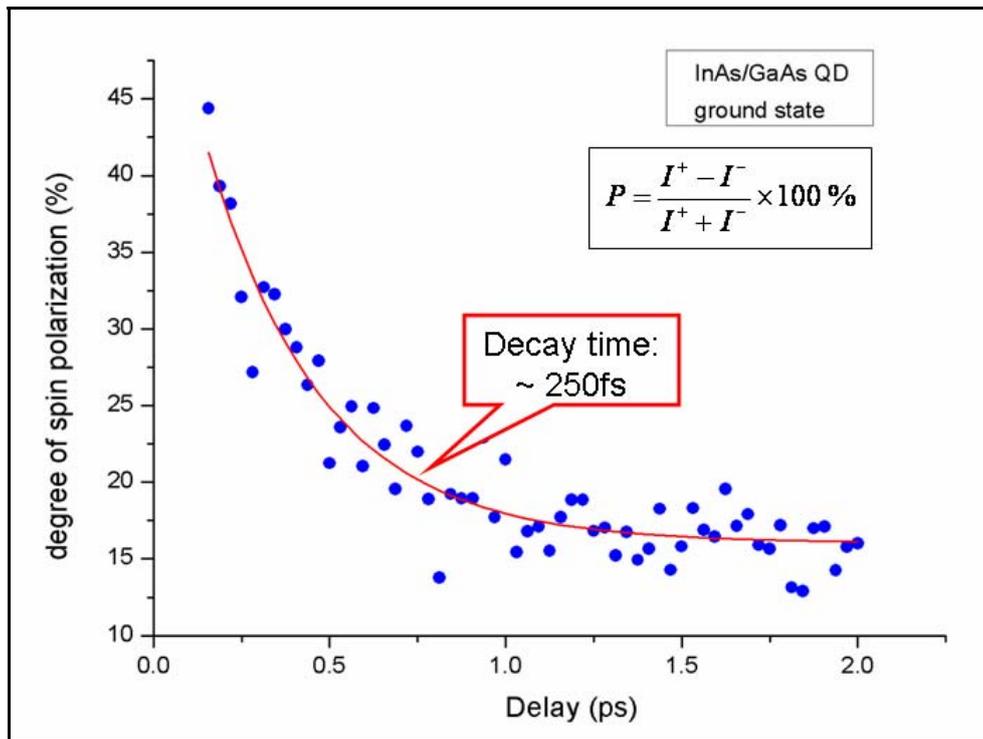


圖 5-9 2ps 之內自旋極化率曲線

在時間 2ps 之內的自旋極化率曲線與時間為單指數函數(monoexponential)關係

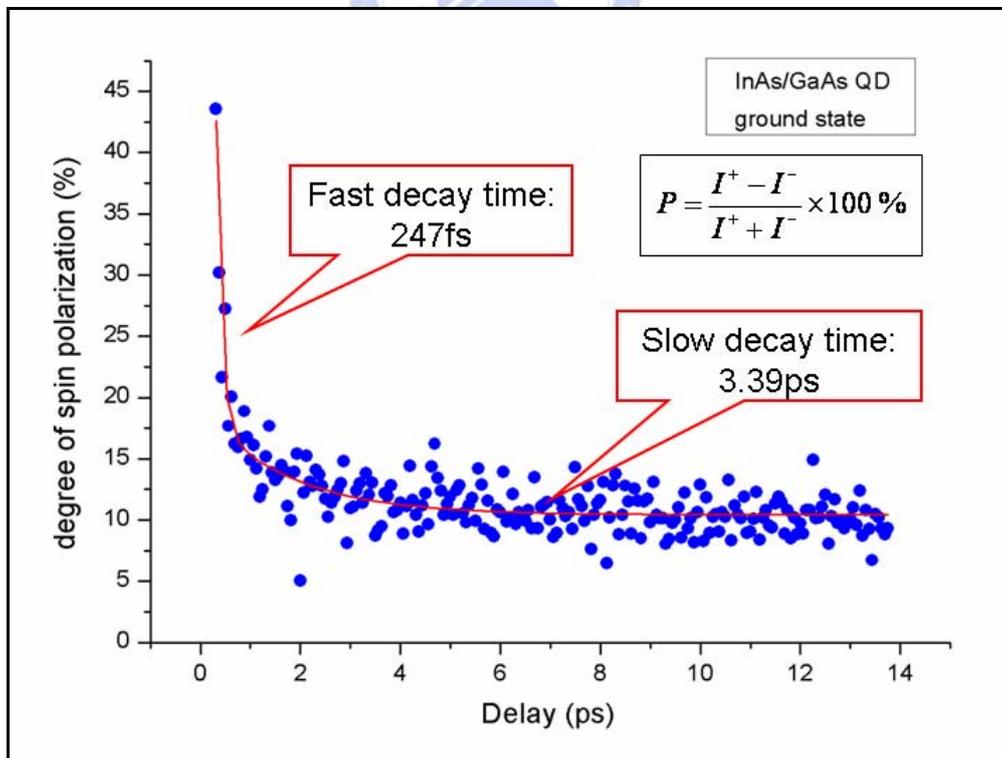


圖 5-10 超過 2ps 自旋極化率曲線

超過 2ps 之的自旋極化率強度與時間關係屬於雙指數函數(biexponential)。

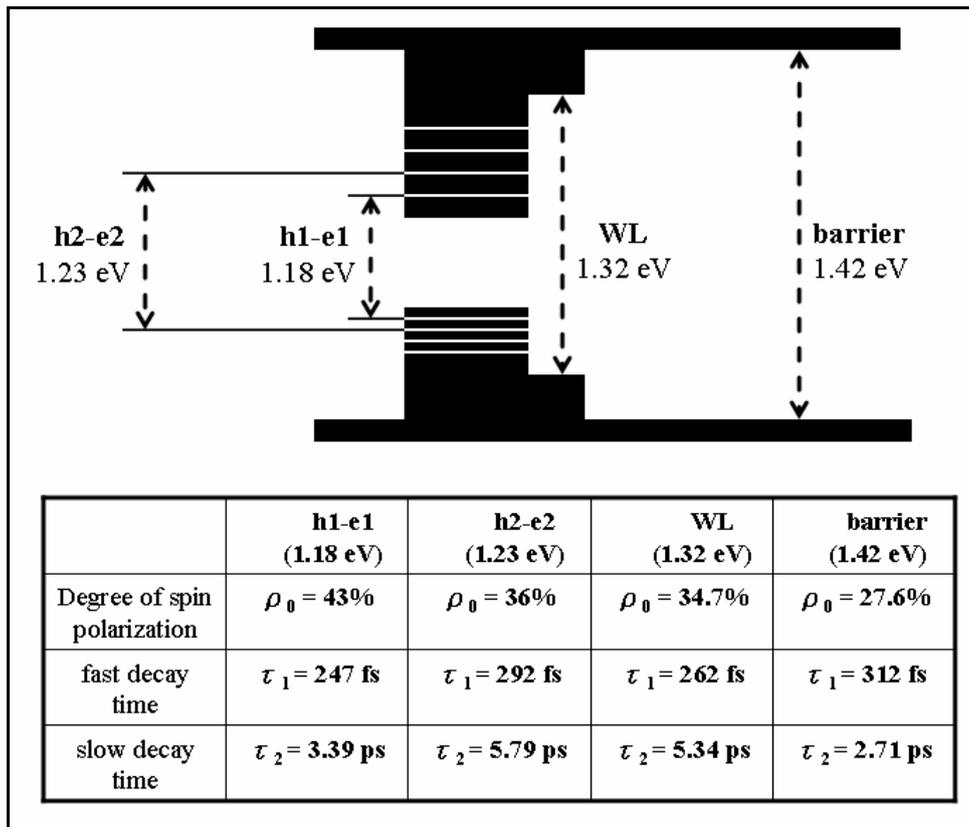


圖 5-11 量子點基態、激發態、溼潤層和基材的自旋極化率

比較量子點基態(h1-e1)、激發態(h2-e2)、溼潤層(WL)和基材(GaAs barrier)的自旋極化率與自旋生命週期。自旋極化率的起始值 ρ_0 以量子點內基態最高(43%)依次是激發態(36%)、溼潤層(34.7%)和基材(27.6%)； τ_1 (fast decay time)大約在 250 ± 50 fs； τ_2 (slow decay time)則是激發態(h2-e2)和溼潤層內較高(>5ps)，量子點基態約為 3.4ps 大於基材砷化鎵的 2.7ps。

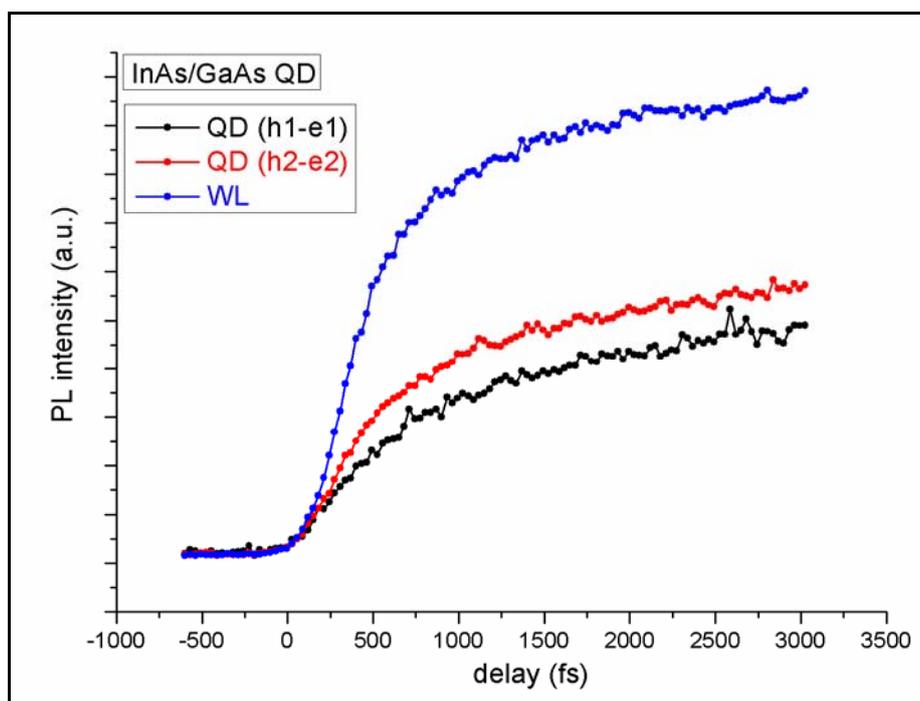


圖 5-12 載子(電子)弛豫的螢光光譜圖

因為考慮雷射脈衝的寬度(150fs)，因此將時間零點後 150fs 處的自旋極化率定義為 ρ_0 ， ρ_0 代表載子擁有的自旋數在未弛豫前的情況。樣品在受光激發的最初，量子點內的自旋極化率最高，因為分析載子(電子)弛豫的螢光光譜圖可以發現基態和激發態的 rising time (relaxation time) 比溼潤層長，所以溼潤層內處在激發態的載子相對於基態和激發態的載子數量多，大約在 2~3ps 即達飽和。除了量子點結構維度低於溼潤層的原因之外，填進量子點基態的電子數目較少，在樣品受光激發的初期造成 Pauli blockade 現象不明顯，致使基態的最初自旋極化率 ρ_0 較高。

5-1-3 Carrier-Carrier Scattering 與載子自旋

改變激發光源(脈衝雷射)強度：

Power density	Full power: I	90% I	80% I	50% I
Fast decay time	$\tau_1 = 111 \text{ fs}$ ± 9	$\tau_1 = 247 \text{ fs}$ ± 19	$\tau_1 = 329 \text{ fs}$ ± 43	$\tau_1 = 391 \text{ fs}$ ± 45
Slow decay time	$\tau_2 = 1.72 \text{ ps}$ ± 0.18	$\tau_2 = 3.39 \text{ ps}$ ± 0.38	$\tau_2 = 3.87 \text{ ps}$ ± 1.19	$\tau_2 = 9.16 \text{ ps}$ ± 3.99

表 5-1 激發光源強度與 Decay time 關係

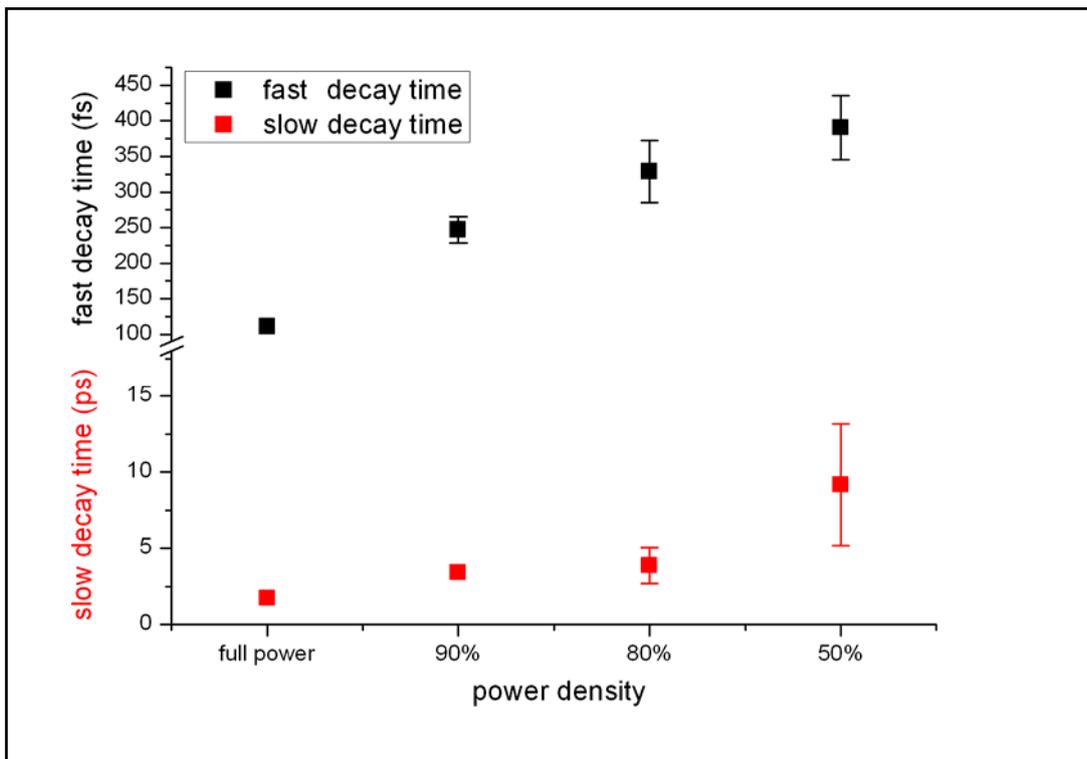


圖 5-13 激發光源強度與 Decay time 關係

降低激發光源(脈衝雷射)強度，fast decay time、slow decay time 皆有明顯拉長的傾向。slow decay process 的弛豫機制可以從載子與聲子作用產生 exciton、bi-exciton、trion等解釋。然而與聲子的作用需要大約 1ps 以上的時間，因此，fast decay process (<1ps)必定存在某種在電子—電洞對產生瞬間影響載子自旋方向的作用力—庫倫作用力(Coulomb force)。

5-1-4 移動載子與內感磁場

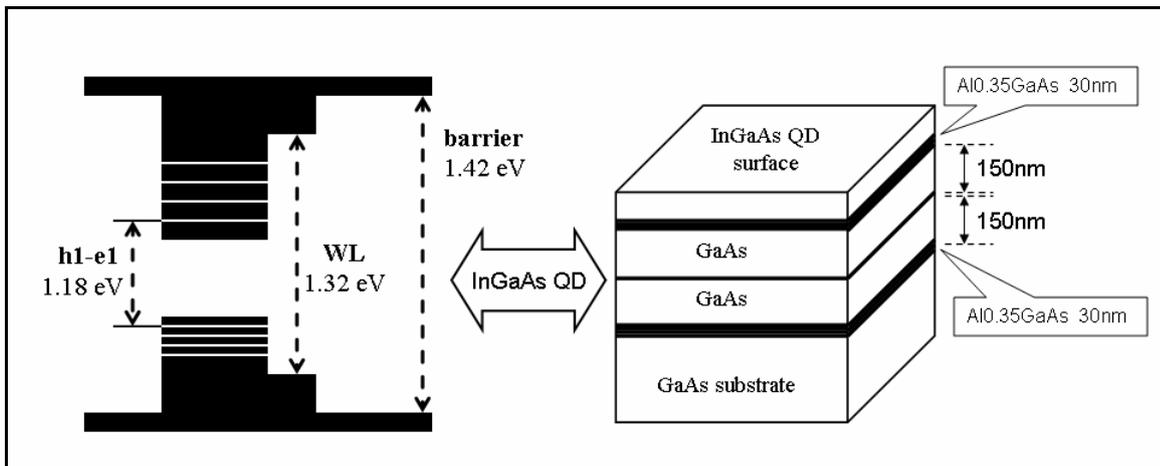


圖 5-14 InGaAs/GaAs 量子點結構

以線性極化光激發InGaAs/GaAs量子點樣品，發現GaAs所散射螢光在500fs之後開始分裂。在異質介面可能產生短暫的電荷疊積，當載子穿過異質介面產生感應磁場，影響載子的自旋方向[8][9]，量測GaAs塊材或量子井等對稱性結構則無此現象。樣品內部所感應的磁場是否足以擾動載子的自旋行為，仍需要更多的實驗數據與理論計算來分析。

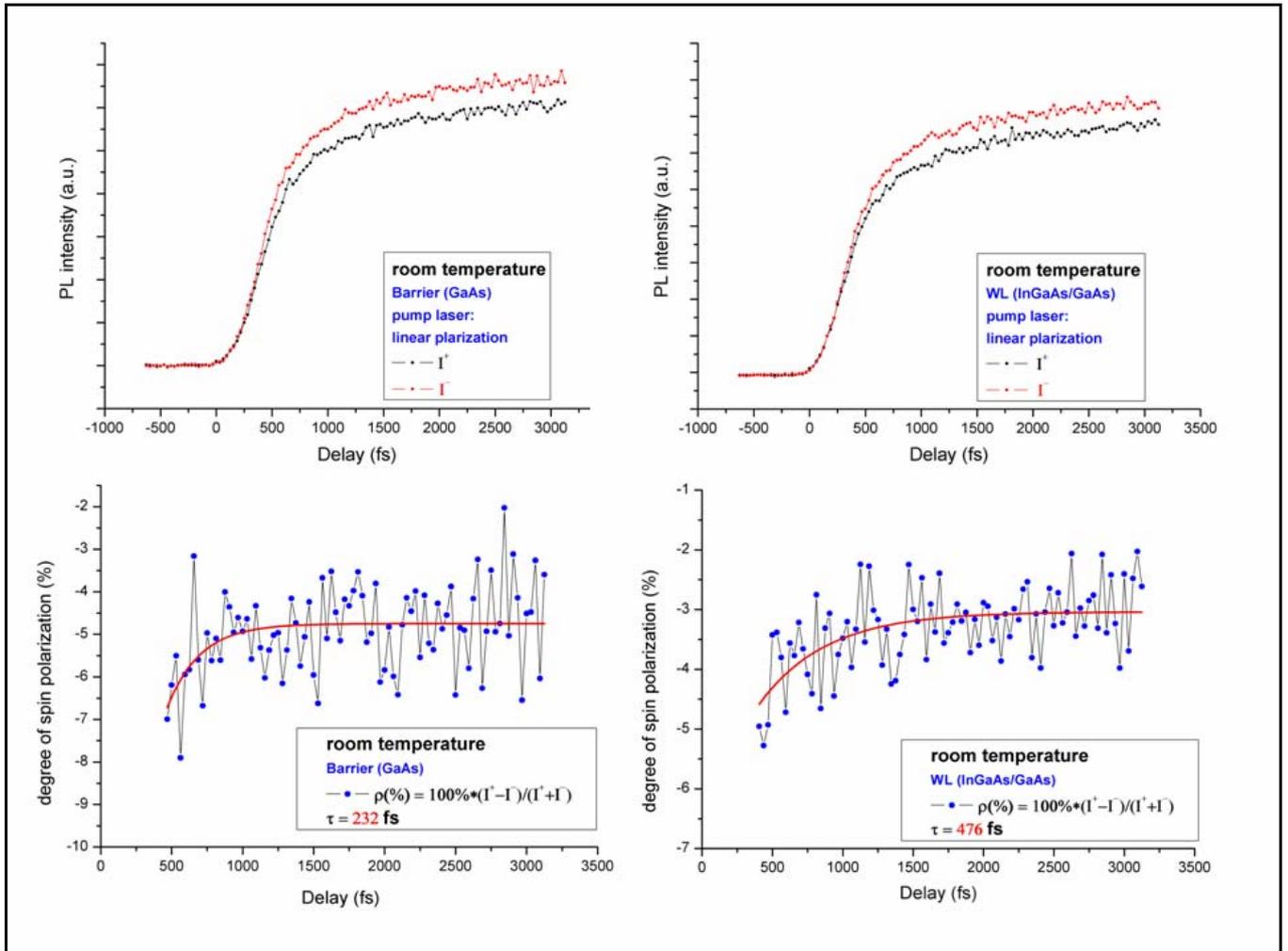


圖 5-15 線性激發光源所產生之自旋極化

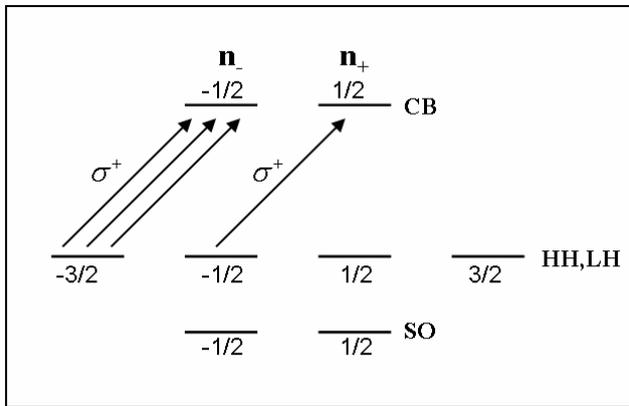
5-2 電子自旋弛豫機制

在第一章中，已概念性的討論電子自旋機制，在推導的過程中還未加入時間項，因此所算出的結果實察上是屬於與時間無關的機率函數— ρ_0

$$(\rho_0 = \rho(t=0))$$

$$\rho(t) = \frac{\sigma^+ - \sigma^-}{\sigma^+ + \sigma^-} \cong \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = P_{circ}$$

(I^\pm 值為光譜儀所量測之訊號， $\rho(t)$: degree of spin polarization 自旋極化率。)



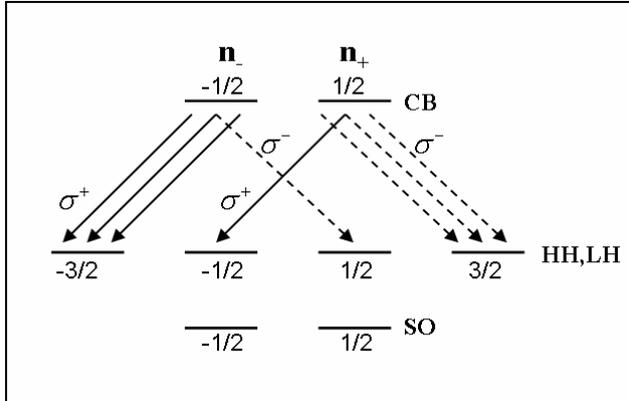
以極化方向為 σ^+ 的雷射激發砷化鎵晶體(塊材)，光子的能量介於 $E_g + \Delta_{SO}$ 與 E_g 之間 ($E_g + \Delta_{SO} > \hbar\omega > E_g$ ， $\hbar\omega$ 為入射光子能量)時，由於：

$$\frac{\text{spin down}}{\text{spin up}} = \frac{n_-}{n_+} = \frac{\left| \langle 1/2, -1/2 | Y_1^1 | 3/2, -3/2 \rangle \right|^2}{\left| \langle 1/2, 1/2 | Y_1^1 | 3/2, -1/2 \rangle \right|^2} = 3$$

晶體內電子自旋極化為： $P_n = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_-} = \frac{1-3}{1+3} = -\frac{1}{2}$ (P_n spin polarization)。

電洞自旋弛豫的速度比電子—電洞結合的速度還快，因此將電洞的 P_n 視為零，可以算出實驗上量測到的起始值。電洞相對於導帶電子處在與原子核較接近的幾何空間，因此容易從晶體得到聲子使自旋轉向，並且，若量子點中導帶內的分立能階(intra-band)比價帶能階要求更為嚴謹，或因為價帶在分立能階還

可細分成重電洞、輕電洞，所以電洞在價帶躍遷受到聲子瓶頸(phonon bottleneck)的影響比電子在導帶更不明顯，造成自旋電洞極化率快速衰減的另一原因。



$$P_{circ} = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} = \frac{(n_+ + 3n_-) - (3n_+ + n_-)}{(n_+ + 3n_-) + (3n_+ + n_-)} = -\frac{P_n}{2} = \frac{1}{4} = 25\%$$

由實驗得到的值 $\rho_0 = 24.9\%$ 與理論的 25% 極為近似，然而同樣的量測載子在樣品中砷化鎵裡的 P_n 和 $P_{circ} = 27.6\% > 25\%$ 卻高於理論值，因為製作量子井或量子點的過程中，在異質介面由於表面張力或晶格不匹配所造成。

在電子弛豫的過程中， σ^\pm 是指電子與電洞結合後所放光子所帶有的自旋數；換言之，當電子由導帶的能態 $\left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle$ 掉回價帶的能態 $\left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle$ 時，儘管自旋數減一 ($\Delta m_j = -1$)，但由於系統(砷化鎵晶體)是回到原來狀態(電子未激發時處在能態 $\left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle$)，所以放出帶有訊號為 σ^+ 的光子，系統保持動量、能量守恆。

只考慮載子再結合(carrier recombination)和自旋弛豫(spin relaxation)的機制，推算整個系統裡載子自旋總數達動態平衡的過程；載子產生自旋總數的變化量等於載子失去自旋數總量的過程。在質地均勻的半導體晶體中，光激發所產生的電子—電洞對與電子—電洞再結合的關係式可表示為： $G = r(np - n_0 p_0)$ ， G 代表光激發產生電子—電洞對的速率、 r 是電子—電洞再結合的速率、 n 和 p

是電子和電洞的密度、 n_0 和 p_0 則是平衡時電子和電洞的密度。

自旋產生與自旋弛豫的關係式為： $P_n(t=0)G = rsp + \frac{S}{\tau_s}$ ， $s = n_+ - n_-$ 電子自旋密度、 τ_s 是自旋弛豫時間； rsp 是載子再結合所造成的自旋密度改變(降低)量、 $\frac{S}{\tau_s}$ 則是自發的自旋密度改變(降低)量。自旋總數達動態平衡時：

$$P_n = P_n(t=0) \frac{r(np - n_0 p_0)}{rsp + (s/\tau_s)} = \frac{1 - (n_0 p_0 / np)}{1 + (1/\tau_s) rp} \quad (n = n_+ + n_-, P_n(t=0) = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_-})$$

考慮正型半導體(p-doped)晶體時，因為 $p \approx p_0, n \gg n_0$ ，可以將式子改寫為：

$$P_n = \frac{1}{1 + (\tau/\tau_s)} \quad (\tau = \frac{1}{rp_0} \text{ 電子在激發態的生命週期})，自旋極化率與產生電子—電洞對的速率無關。$$

考慮負型半導體(n-doped)晶體時，因為 $n \approx n_0, p \gg p_0$ ，可以將式子改寫為：

$$P_n = \frac{1}{1 + (n_0/\tau_s)G}$$

，與電洞的生命週期 $\tau = \frac{1}{m_0}$ 無關，但受到電子—電洞對產生的速率 G 所影響。在樣品受光激發的短暫過程，自旋載子的極化率衰減遵循上述公式，在雷射脈衝結束之後，不再提供帶有一個單位角動量的光子，促使某一自旋方向的載子高於另一方向，自旋載子開始弛豫($\rho(t) \leq \rho_0$)。

針對電子、電洞的研究選用不同摻雜型態的樣品：對於電子自旋的研究一般選用正型半導體樣品，當激發樣品前後量子點內產生的電洞數量遠小於摻雜量，可以視電洞數量不變 $p \approx p_0$ ；反之，研究電洞自旋行為則選用負型半導體。

以 Hamiltonian 方程式描述自旋電子在量子點內的狀態：

$$H = H_d + H_Z + H_{SO} + H_{ph} + H_T + H_l + H_{coul}$$

將總 Hamiltonian 方程式 H 細分為七項

$$H_d = \frac{p^2}{2m^*} + U(r) \quad (m^* : \text{electron effective mass}, \quad U(r) : \text{confinement potential})$$

H_d 描述電子在量子點內的動能與位能，單量子點的研究則將此項改寫為 H_0 ；

$$H_z = \left(\frac{1}{2}\right)g\mu_B B \sigma_y \quad (g : \text{effective Lande factor}, \quad \mu_B : \text{Bohr magneton})$$

$\sigma_y : \text{Pauli matrix, the magnetic field is oriented along } y)$

H_z 描述量子點處在外加磁場的狀態下，塞曼效應使量子點能階分裂。在沒有外加磁場的狀況下，必須嚴謹的考慮電子在異質介面是否因為電荷疊積產生瞬間磁場。

$$H_{SO} = H_R + H_D = \alpha_R(k_x\sigma_y - k_y\sigma_x) + \alpha_D(k_x\sigma_x - k_y\sigma_y)$$

$(H_R : \text{Rashba coupling}, \quad H_D : \text{Dresselhaus coupling})$

H_{SO} 描述自旋—軌道耦合，在三—五族半導體中可將此分為 Rashba 與

Dresselhaus 兩項，分別來自於結構倒置不對稱(macroscopic asymmetry of the structure)與基體倒置不對稱(microscopic inversion asymmetry of the cell)。上式

$H_R = \alpha_R(k_x\sigma_y - k_y\sigma_x)$ 與 $H_D = \alpha_D(k_x\sigma_x - k_y\sigma_y)$ 適用在分析量子井結構。在量子點的計算過程中因為 $\alpha_R \gg \alpha_D$ ，通常將 Dresselhaus 項省略。

$$H_{ph} = U_{ph}(r) \quad (U_{ph} : \text{phonon potential})$$

H_{ph} 描述量子點與聲子反應產生的自旋—聲子耦合。

$$H_T = H_L + H_R$$

H_T 描述電子穿隧(tunnel)的行為。以 InAs/GaAs 量子點樣品為例，InAs 與 GaAs 有兩個異質介面，一邊是量子點結構、一邊是溼潤層，兩邊 GaAs 內電子在穿過位能障進入 InAs 或兩側的其它載子與量子點內電子作用的過程不同，因此將

H_T 分為 H_L 、 H_R 兩項。

H_l 描述入射光(雷射)對量子點產生的場(雷射的電場或磁場)與自旋的耦合。

[20][21][22][23]

$$H_{coul} = H_{free}^e + H_{free}^h + H_{coul}^{e-e} + H_{coul}^{h-h} + H_{coul}^{e-h}$$

Hamiltonian 的 H_{coul} 項表示載子在量子點內之庫倫作用力，亦是造成自旋極化率第一階段(fast decay process)的主要機制，接著以兩個電子與兩個電洞描述單量子點內載子組成與自旋系統的關係：

$$H_{free}^e = \sum_i \varepsilon_i a_i^\dagger a_i \quad ; \quad H_{free}^h = \sum_j \varepsilon_j b_j^\dagger b_j \quad \varepsilon_i, \varepsilon_j \text{ 對應單載子在量子點內能階；}$$

$$H_{coul}^{e-e} = \frac{1}{2} \sum_{i_1, i_2, i_3, i_4} a_{i_1}^\dagger a_{i_2}^\dagger a_{i_3} a_{i_4} G_{i_1, i_2, i_3, i_4} \quad \text{電子—電子作用力；}$$

$$H_{coul}^{h-h} = \frac{1}{2} \sum_{j_1, j_2, j_3, j_4} a_{j_1}^\dagger a_{j_2}^\dagger a_{j_3} a_{j_4} G_{j_1, j_2, j_3, j_4} \quad \text{電洞—電洞作用力；}$$

$$H_{coul}^{e-h} = \sum_{j_1, i_2, j_3, i_4} a_{i_2}^\dagger a_{i_4} b_{j_3}^\dagger b_{j_1} G_{j_1, i_2, j_3, i_4} - \sum_{i_1, j_2, j_3, i_4} a_{i_1}^\dagger a_{i_4} b_{j_3}^\dagger b_{j_4} G_{i_1, j_2, j_3, i_4} \quad \text{電子—電洞作用力；}$$

a_i, b_j 為湮滅算符(annihilation operators)；

a_i^\dagger, b_j^\dagger 為產生算符(creation operators)，

i, j 下標為電子與電洞的表示符號。

$$G_{i_1, i_2, i_3, i_4} = \delta_{S_4, S_1} \delta_{S_3, S_2} \iint d^3r d^3r' \phi_{i_1}^*(\vec{r}) \phi_{i_2}^*(\vec{r}') \times \frac{e^2}{\varepsilon |\vec{r} - \vec{r}'|} \phi_{i_3}(\vec{r}) \phi_{i_4}(\vec{r}')$$

$\delta_{i,j}$ 屬於 Kronecker delta， e 為載子電荷， S_i 表示載子的自旋狀態，

$\phi_i(\vec{r})$ 定義載子在量子點內活動空間或受到位能障的局限範圍。[24]

第六章 結論

自旋電子學屬於一門建構在固態物理下的整合性科學，在這領域的研究必須仰賴其它既有學科，如量子物理、半導體物理、磁性物理等等。在資訊導向的現今社會，資訊科技的進展速度著實令人目不暇給；透過電腦能很快地接收或傳遞世界各地的信息。導致現代資訊科技發展的兩個主要條件：組成資訊系統的元件必須運作快速，且具備輕、薄、短、小的特性。因此在自旋電子學領域，現階段開發的技術以定點下操控電子自旋及傳輸電子自旋訊息為主。

從本論文的數據可以明顯的看出在室溫下，圓偏振光對量子點結構內電子的自旋注入，比塊材高出將近一倍的差距，有著接近百分之五十的自旋極化率，十分貼近應用層面。但由於室溫下固定電子自旋態並不容易，因此，吾人在實驗過程中尋找加長自旋極化率生命週期的參數，發現在不影響自旋注入的情況下降低入射光子密度，可以有效加長維持自旋方向的時間！除此之外，從自旋弛豫的衰減曲線，可以得到兩個影響自旋弛豫之主要機制的結論，一個是來自庫倫作用力所產生使電子自旋態快速變調的fast decay過程；另一個是則是由自旋載子與聲子作用的slow decay過程。

實驗室對於研究奈米結構內載子的自旋機制已有相當的成果，樣品的選用傾向低對稱性結構(量子點、量子環)，其中載子維持自旋同調性時間長於高對稱性結構(量子井、塊材)。爾後將針對不同的結構、材質作研究，優化系統提高自旋注入率、降低雜訊比、穩定樣品溫度，是接下來研究的主要目標。

參考文獻

- [1] Charles Kittel“Introduction to Solid State Physics 8ed”
- [2] “半導體量子點與量子資訊” 物理雙月刊 二十五卷四期
- [3] S. D. Ganichev, E. L. Ivchenko, S. N. Danilov, J. Eroms, W. Wegscheider, D. Weiss, and W. Prettl Phys. Rev. Lett. 86, 4358 (7 May 2001)
- [4] “前途無量的自旋電子 ” 撰文／柯林斯 (Graham P. Collins) 翻譯／陳智泓 Scientific American 2003 年 3 月
- [5] “磁阻式隨機存取記憶體技術的發展” 物理雙月刊 二十六卷四期
- [6] K. Gundogdu, K. C. Hall, Appl. Phys. Lett. 86, 113111 (2005)
- [7] S. Marcinkevicius J. Siegert, and Q. X. Zhao, Journal of Appl. Phys. 100, 054310 (2006)
- [8] Yu. D. Glinka, T. V. Shahbazyan, I. E. Perakis, N. H. Tolk, X. Liu, Y. Sasaki and J. K. Furdyna SIA Surf. Interface Anal. 2003; 35: 146–150
- [9] Yu. D. Glinka, T. V. Shahbazyan, I. E. Perakis, N. H. Tolk, X. Liu, Y. Sasaki, and J. K. Furdyna Appl. Phys. Lett. 81, 3717 (2002)
- [10] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich P Phys. Rev. B 7, 118 (1961)
- [11] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan Physical Review 127, 1918
- [12] G. Chen, N.H. Bonadeo, D.G. Steel, D.Gammon, D.S. Katzer, D. Park, L.J. Sham, Science 289, 1906 (2000).
- [13] P. Chen, C. Piermarocchi, and L. Sham, Phys.Rev. Lett. 87, 67401 (2001).
- [14] C. Piermarocchi, P. Chen, Y.S. Dale, and L.Sham, Phys. Rev. B 65, 075307 (2002).
- [15] Introduction to electrodynamics 3ed. David J. Griffiths
- [16] Optical electronics in modern communications 5ed. Amnon Yariv 1997
- [17] Jagdeep Shah Journal of quantum electronics. vol. 24 no. 2
- [18] C. M. Lai, F. Y. Chang, C. W. Chang, C. H. Kao, H. H. Lin and G. J. Jan, Appl. Phys. Lett. 82, (2003).
- [19] NEW FOCUS Application Note 3 Polarization and Polarization Control
- [20] K. Roszak, A. Grodecka, P. Machnikowski, and T. Kuhn Phys. Rev. B 71, 195333 (2005)
- [21] Jörg Lehmann and Daniel Loss Phys. Rev. B 73, 045328 (2006)
- [22] Vitaly N. Golovach, Alexander Khaetskii, and Daniel Loss Phys. Rev. Lett. 93, 016601 (2004)
- [23] Institut fur Theoretische Festkorperphysik, Universitat Karlsruhe, Karlsruhe, Germany
PHYSICAL REVIEW LETTERS 89, 206802 (2002)
- [24] E. Dekel, D. Gershoni, and E. Ehrenfreund, J. M. Garcia, and P. M. Petroff
Phys. Rev. B 61, 11009