

外磁场对(Ga,Mn)As 有效 g 因子的影响^{*}

周 蓉 孙宝权[†] 阮学忠 甘华东 姬 扬 王玮竹 赵建华

(中国科学院半导体研究所超晶格与微结构国家重点实验室 北京 100083)

(2007 年 11 月 28 日收到 2008 年 4 月 22 日收到修改稿)

利用时间分辨 Kerr 旋光技术测量低温下稀磁半导体 $\text{Ga}_{0.937}\text{Mn}_{0.063}\text{As}$ 中光注入极化载流子的自旋进动信号,并观察到自旋极化载流子的有效 g 因子值随外磁场的增强而增大的反常现象.这归结于磁场导致局域化空穴转化为非局域化空穴,从而使自发磁化强度增强,有效 g 因子值增大.基于此物理图像,进一步给出了(Ga,Mn)As 的有效 g 因子与外磁场的关系式.

关键词:时间分辨 Kerr 旋光测量, Zeeman 效应, Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida 模型

PACC: 7550, 7130, 7280E

1. 引 言

现代信息技术的基础是半导体和磁性材料.在半导体晶体管和集成电路中利用电子的电荷自由度来进行信息处理和传输,而在磁性材料的多层结构中利用电子的自旋自由度来进行信息存储和读写,两者是完全分开进行的.如果能同时利用电子的电荷和自旋属性,无疑将会给信息技术带来崭新的面貌.以 III-V 族半导体 GaAs 为代表,若在其中掺入磁性金属元素 Mn,使之兼具常规半导体(p 型)和载流子诱导的铁磁性特性,则可望实现新一代半导体自旋电子器件.1996 年,人们成功地利用低温分子束外延(LT-MBE)技术得到(Ga,Mn)As 稀磁半导体(DMS)材料^[1],并通过电子顺磁共振^[2]、红外光谱^[3]、扫描隧道显微镜^[4-6]以及磁性测量^[7]等实验手段得知:Mn²⁺ 替代阳离子 Ga³⁺,以受主态存在.不加偏压时,Mn²⁺ 的电子态可记为 $A^0(d^5 + h)$, A^0 表示电中性中心,即由一个轨道角动量 $L = 0$,自旋量子数 $S = 5/2$,朗德因子 $g = 2$ 的局域磁矩和一个弱束缚的空穴组成.(Ga,Mn)As 材料铁磁性的起源可以用 Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY)模型来描述.为了进一步实现对 DMS 中自旋自由度的主动控制,近年来,发展了很多实验方法来研究自旋动力学和自旋弛豫方面的问题,其中时间分辨

Kerr/Faraday 旋光测量就是最有效的光学测量方法.

本文以 LT-MBE 生长的(Ga,Mn)As 为研究对象,利用时间分辨 Kerr 旋光技术测量低温下光注入自旋极化载流子在不同磁场下的 Larmor 进动,并由此得到有效 g 因子(g_{eff})的值,然后详细讨论 g_{eff} 随外磁场变化的物理机制,并给出了半定量描述.

2. 实 验

我们利用 LT-MBE 技术制备 $\text{Ga}_{0.937}\text{Mn}_{0.063}\text{As}$ 样品.先将 GaAs 衬底加热到 580 °C 脱氧,然后沿其(001)方向生长 100 nm 的 GaAs 缓冲层来平滑衬底表面,最后在缓冲层上生长 500 nm 的 $\text{Ga}_{0.937}\text{Mn}_{0.063}\text{As}$.反射式高能电子衍射的结果表明, $\text{Ga}_{0.937}\text{Mn}_{0.063}\text{As}$ 样品为闪锌矿结构,且只存在单相.超导量子干涉仪测量表明,样品铁磁相变温度为 55 K,易磁化轴方向平行于样品平面,当外磁场下磁感应强度 $B_{\text{ext}} = 0.03$ T 时,样品达到饱和磁化.抽运光源和探测光源均为飞秒掺钛蓝宝石激光器,其脉冲重复频率为 76 MHz,脉冲宽度为 200 fs,波长调谐到 GaAs 的带边附近.实验中,样品与磁场的相对位置满足 Voigt 图像,即样品的生长方向(001)平行于 z 轴,磁场沿 y 轴,抽运光和探测光传播方向沿 z 轴.在磁场下,利用圆偏振抽运光激发(Ga,Mn)As 样品,并根据选择定则使得价带顶空穴载流子形成自旋极化系统.再引入时间延

^{*} 国家自然科学基金(批准号:10334030,60676054)资助的课题.

[†] E-mail: bqsun@red.semi.ac.cn

迟 利用线偏振探测光的偏振面角度变化来反映自旋系统的 Larmor 进动过程. Larmor 进动的旋转角可表示为^[8]

$$\theta_K = \sum_i A_i \exp\{-\Delta t_i / \tau_i^*\} \times \cos\left(\frac{\mu_B B_{ext} g_{i,eff}}{\hbar} \Delta t_i - \varphi_i\right) + C, \quad (1)$$

式中 Δt_i 为抽运光与探测光的两臂时间延迟, τ_i^* 为横向自旋退相干时间, $g_{i,eff}$ 为参与进动的第 i 种载流子的有效 g 因子.

3. 实验结果及分析

图 1 为 $T = 5$ K 时样品在不同外磁场下的 Kerr 旋光信号. 在圆偏振光激发下 (Ga,Mn)As 样品中形成自旋极化系统, 该系统包括光注入极化载流子(导带电子和价带空穴)和磁性离子 Mn^{2+} , 因此 Kerr 旋光信号源于其中某种粒子的进动. 由于 (Ga,Mn)As 样品为 p 型重掺杂, 因此激发的导带电子将很快与价带空穴发生复合, 其复合寿命约为 1 ps^[9,10], 而图 1 显示, 当磁场较小时极化自旋寿命可长达几百皮秒, 因此该振荡信号不是导带电子导致的. 而 Mn^{2+} 的磁矩 ($\mu_{Mn^{2+}} = 5\mu_B$) 较大, 自旋状态不易改变, 在光注入极化空穴的影响下, 其自旋偏离原方向的幅度很小, 所以该振荡信号也不是由 Mn^{2+} 引起的. 此外, 如图 2 所示, 由 (1) 式拟合得到不同外磁场下 g_{eff} 的值约为 0.2, 这与 Mn^{2+} 的 g 因子值(约为 2), 以及导带底电子的 g 因子值(约为 -0.44) 相差很大. 因而, 可以进一步确定该信号来自于价带极化空穴的 Larmor 进动. 由于实验中只观测到单一频率的进动, 故可认为该进动主要来自价带顶附近的重空穴, 而无需考虑轻空穴. 由此可见, 实验测得的重空穴 g_{eff}

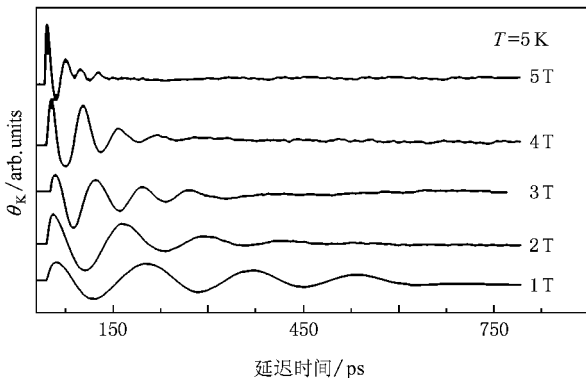


图 1 低温下测量得到不同磁场下极化空穴的 Kerr 旋光信号

的值(约为 0.2)比非磁性掺杂的 p 型 GaAs 的 g 因子值(约为 0.04)^[11,12]大得多, 说明 (Ga,Mn)As 中存在巨 Zeeman 效应, 该效应主要是由 Mn^{2+} 与空穴之间的 p-d 交换作用所致.

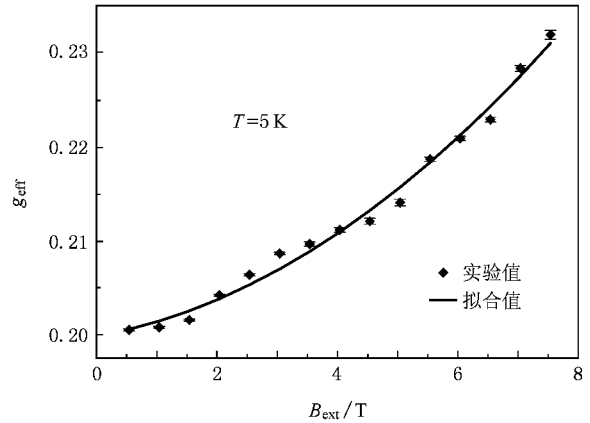


图 2 低温下测量得到 Ga_{0.937}Mn_{0.063}As 样品中 g_{eff} 随 B_{ext} 的变化

下面着重讨论 g_{eff} 的值与外磁场的关系. 已知重空穴在外磁场下的能级劈裂可表示为

$$\begin{aligned} \Delta E &= \hbar\omega_L \\ &= g_{eff} \mu_B B_{ext} \\ &= g_0 \mu_B (B_{ext} + \lambda M_s), \end{aligned} \quad (2)$$

式中 g_0 是由价带空穴在确定费米能级处的自旋轨道耦合作用决定的, 它反映了材料自身自旋极化的能力, 其值一般不随外界因素的变化而改变; M_s 是自发磁化强度,

$$M_s = g_{Mn^{2+}} \mu_B S N_{eff}^* B_s \left(\frac{g_{Mn^{2+}} \mu_B S}{k_B T} B_{eff,h} \right),$$

其中 B_s 为布里渊函数, N_{eff}^* 是形成铁磁耦合的有效 Mn^{2+} 离子数, $B_{eff,h}$ 是非局域空穴自旋子系统作用到 Mn^{2+} 自旋子系统上的有效磁感应强度. 在我们的实验条件下 ($T = 5$ K, $B_{ext} = 0.5 - 7.5$ T), 样品磁化强度 M_s 已达到饱和. 由理论分析可知, g_{eff} 的值应随外磁场的增强而缓慢减小^[13],

$$g_{eff} = g_0 \left(1 + \frac{\lambda M_s}{B_{ext}} \right). \quad (3)$$

然而, 实验测得 g_{eff} 随外磁场的增强而增大, 并且在 5—60 K 温度范围内都有 $g_{eff}(2\text{ T}) < g_{eff}(3\text{ T}) < g_{eff}(4\text{ T})$, 如图 3 所示.

造成上述矛盾的主要原因是 (3) 式的推导过程中忽略了外磁场对 (Ga,Mn)As 中局域空穴的影响. 根据 RKKY 模型 (Ga,Mn)As 的弱铁磁性源于 Mn^{2+} 局域磁

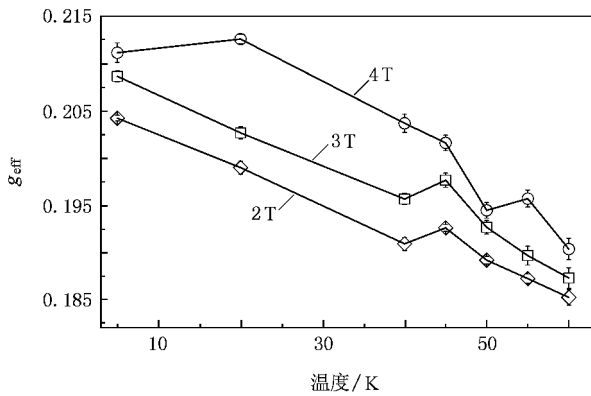


图 3 在 5—60 K 温度范围内, $B_{ext} = 2, 3, 4$ T 时 g_{eff} 的测量结果

矩通过非局域空穴作为媒介而发生间接交换作用,从而形成磁长程有序.换言之,只有波函数比较扩展的非局域空穴才能将一定范围内的 Mn^{2+} 局域磁矩耦合在一起,产生自发磁化.然而在 $(Ga, Mn)As$ 无序系统中,杂质 Mn 离子破坏 GaAs 的原子周期势场,使能量较低的空穴波函数很容易被无规势散射而发生局域化.这部分局域空穴不能耦合 Mn^{2+} 局域磁矩以形成磁长程有序,因此对自发磁化没有贡献.那些未被耦合的 Mn^{2+} 则处于顺磁态.图 4 (a) 为无外磁场时空穴自旋子系统的能带结构图.图 4 (a) 中非局域空穴处于价带中,如图中的灰色区域所示,局域空穴则位于价带顶的尾带结构中,如图中的黑点区域所示,它们之间的临界能量用迁移率边 E_c 来表示.空穴能量 E_h 高于 E_c 的为非局域化空穴,对铁磁耦合有贡献,而能量低于 E_c 的部分为局域化空穴,对铁磁耦合没有贡献. $(Ga, Mn)As$ 的能带结构是半金属 (half-metal) 性的^[14],即在费米能级处自旋向下的空穴(自旋多数态)态密度很大,自旋向上的空穴(自旋少数态)态密度为零.自旋少数态在费米能级处有一个带隙结构,表现出半导体性质,自旋多数态的态密度在费米能级处是连续的,表现出金属性质^[15,16].因此,只有自旋向下的空穴为非局域空穴.

当 $(Ga, Mn)As$ 达到饱和磁化时,则所有铁磁态和顺磁态的 Mn^{2+} 都已沿磁场方向极化,并设 Mn^{2+} 的自旋方向向上.加磁场后, Zeeman 效应将造成自旋子能带发生相对移动,导致局域空穴转变为非局域空穴,具体过程如图 4 (b) 所示.平行与反平行磁场的电子子能带在磁场中的趋向能分别为 $-g_0\mu_B B$ 和 $g_0\mu_B B$, 即自旋向下的空穴能量将减小,而自旋向上的空穴能量将增加,且能量高于迁移率边的局域空穴将转变为非局域化空穴.由于自旋向

上的非局域空穴与自旋向上的 Mn^{2+} 之间的 p-d 交换作用能较高,不能形成稳定的电子态,因此自旋向上的非局域空穴将发生自旋翻转,变为自旋向下,与 Mn^{2+} 耦合形成稳定的电子态.这样,原来处于顺磁态的 Mn^{2+} 能通过非局域空穴而形成铁磁耦合,使得自发磁化增强^[17,18], g_{eff} 的值增大.该物理图像也得到 DMS 的负磁电阻效应实验^[19-21] 的支持.

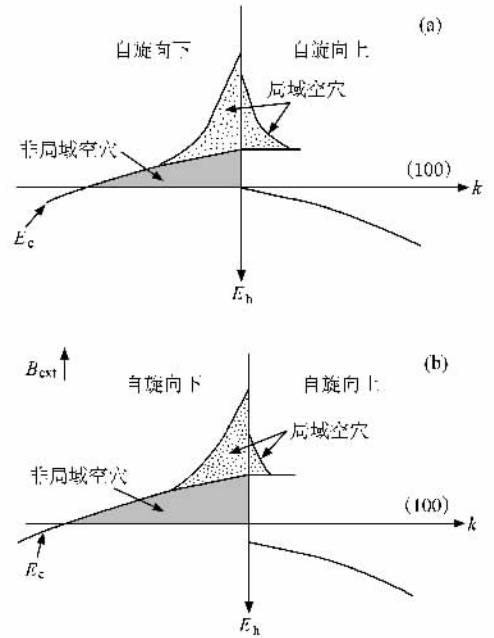


图 4 加磁场前后 $(Ga, Mn)As$ 体材料在价带顶附近的自旋子能带结构 (a) 加磁场前 (b) 加磁场后

假设 E_c 附近空穴态密度 dp/dE 为常数,则局域空穴转变为非局域空穴数 Δp 正比于 B_{ext} , 即

$$\Delta p = 2g_0\mu_B B_{ext} \left. \frac{dp}{dE} \right|_{E=E_c} \propto B_{ext}. \tag{4}$$

那么 $B_{eff,h}$ 可表示为^[22]

$$B_{eff,h} = - \frac{\partial F(p, M)}{\partial M} = - \frac{\partial \int_0^p dp' \epsilon(M, p')}{\partial M} \propto p + \Delta p \propto B_{ext}, \tag{5}$$

式中 $F(p, M)$ 是当非局域空穴数为 $p + \Delta p$ 时,在 Mn^{2+} 子系统的有效磁场作用下非局域空穴子系统的自由能.

替代位 Mn^{2+} 之间的平均距离

$$r^* = \left(\frac{3}{4\pi N_{\text{Mn}}} \right)^{1/3},$$

其中 N_{Mn} 为样品中处于替代位的 Mn^{2+} 浓度. 无外磁场时, 局域空穴的特征尺寸, 即玻尔半径为

$$a^* = \frac{4\pi\epsilon\hbar^2}{m_0^* e^2} \propto \frac{1}{m_0^*}, \quad (6)$$

式中 ϵ 为 GaAs 的介电常数 ($\epsilon = 12$), m_0^* 为无外磁场时局域空穴的有效质量. 若 $a^* < r^*$, 由于空穴在空间上受限而不能与相邻 Mn^{2+} 局域磁矩发生 p-d 交换作用; 当外磁场增加时, 局域空穴动能增加, 有效质量减小, 波函数在垂直磁场方向扩展, 当扩展程度达到 $a^* \sim r^*$ 时, Mn^{2+} 局域磁矩之间就可以通过空穴为媒介发生间接交换作用. 外加磁场时, 自旋向下的局域空穴的能量为

$$E_{\text{loc h}}^{\downarrow} = -\frac{m_0^* e^4}{\chi 4\pi\epsilon\hbar^2} + g_0 \mu_B B_{\text{ext}}.$$

相应的空穴有效质量 m_B^* 可表示为

$$m_B^* = m_0^* - \frac{\chi 4\pi\epsilon\hbar^2}{e^4} g_0 \mu_B B_{\text{ext}} = m_0^* - \beta B_{\text{ext}}, \quad (7)$$

$$\beta = \frac{\chi 4\pi\epsilon\hbar^2}{e^4} g_0 \mu_B,$$

式中 $g_0 = 0.04$, $\beta = 2.5 \times 10^{-3} m_0 \text{T}^{-1}$, m_0 为自由电子的质量. 由于 m_0^* ($m_0^* \approx 2.1 m_0$ — $44 m_0$ ^[23]) 比价带中非局域空穴的有效质量 (约为 $0.5 m_0$) 大得多, 因此在一定磁场范围内都满足条件

$$\beta B_{\text{ext}} \ll m_0^*.$$

由 (6)(7) 式可得外磁场下局域空穴的特征尺寸 a_B^* 为

$$a_B^* \propto \frac{1}{m_B^*} = \frac{1}{(m_0^* - \beta B_{\text{ext}})} \approx \frac{1}{m_0^*} \left(1 + \frac{\beta}{m_0^*} B_{\text{ext}} \right). \quad (8)$$

由此可得空穴特征尺寸范围内形成铁磁耦合的 Mn^{2+} 有效离子数

$$M_{\text{Mn}}^* = \frac{4\pi}{3} (a^*)^3 N_{\text{Mn}} \propto \frac{1}{(m_B^*)^3}$$

$$\propto \left(1 + \frac{\beta}{m_0^*} B_{\text{ext}} \right)^3 \approx 1 + 3 \frac{\beta}{m_0^*} B_{\text{ext}} + 3 \left(\frac{\beta}{m_0^*} B_{\text{ext}} \right)^2 + o \left(\frac{\beta}{m_0^*} B_{\text{ext}} \right)^n. \quad (9)$$

再利用 (2)(9) 式, 得到自发磁化强度

$$M_s \propto N_{\text{eff}}^* B_s(B_{\text{eff h}}) = C_1 B_{\text{ext}} + C_2 B_{\text{ext}}^2 + C_3 B_{\text{ext}}^3 + o(B_{\text{ext}})^n \quad (10)$$

式中 C_1, C_2, C_3 为待定系数.

最终由 (3) 式得到下列 g_{eff} 的表达式:

$$g_{\text{eff}} \approx g_0 [1 + \lambda(C_1 + C_2 B_{\text{ext}} + C_3 B_{\text{ext}}^2)]. \quad (11)$$

利用 (11) 式拟合实验数据, 得到 $C_1 : C_2 : C_3 = 1 : 7.25 \times 10^{-3} : 2.5 \times 10^{-3}$. 结果表明, 拟合曲线与实验数据符合得很好, 如图 2 所示. 当 B_{ext} 从 0.5 T 增强到 7.5 T 时, g_{eff} 的值从 0.2 增大到 0.23, 增加速率为 0.004/T, 并且 B_{ext} 越强, 其非线性项作用越显著. 这一实验结果提示我们, 只要能大幅度地调控非局域空穴的浓度, 就能有效地控制系统的 g 因子及空穴的 Larmor 进动频率, 从而实现对自旋态的调控. 在 (Ga, Mn)As 中, 受低浓度非局域空穴的限制, 其铁磁相变温度还远没有达到室温, 若能通过其他手段提供更多的空穴浓度, 有望提高材料的铁磁相变温度.

4. 结 论

本文利用时间分辨 Kerr 旋光技术测量光注入极化载流子的进动, 得到不同外磁场下重空穴的 g_{eff} , 进一步了解到外磁场对 (Ga, Mn)As 中空穴的状态以及系统铁磁性的影响. 由于 Mn^{2+} 掺杂的无序性, 导致 (Ga, Mn)As 中存在大量局域空穴. 局域空穴处于价带顶的带尾结构中, 对自发磁化没有贡献. 当外加磁场时, 局域空穴动能增加, 波函数扩展, 变为非局域空穴, 并能够耦合一定范围内的 Mn^{2+} 局域磁矩形成磁长程有序, 使自发磁化增强, g_{eff} 的值增大. 这个模型考虑的是 (Ga, Mn)As 中存在巨 Zeeman 效应, 该效应主要是由 Mn^{2+} 与空穴之间的 p-d 交换作用造成的, 与 Mn^{2+} 是否发生饱和磁化无关. 仅考虑磁性离子沿外磁场方向的磁化是不能解释我们的实验结果的.

- [1] Ohno H ,Munekata H ,Penny T ,Molnar S V ,Chang L L 1992 *Phys . Rev . Lett .* **68** 2664
- [2] Schneider J ,Kaufmann U ,Wilkening W ,Baumler M ,Kohl F 1987 *Phys . Rev . Lett .* **59** 240
- [3] Linnarsson M ,Janen E ,Monemar B ,Kleverman M ,Thilderkvist A 1997 *Phys . Rev . B* **55** 6938
- [4] Yakunin A M ,Silov A Y ,Koenraad P M ,Van Roy W ,De Boeck J ,Wolter J H 2004 *Physica E* **21** 947
- [5] Yakunin A M ,Silov A Y ,Koenraad P M ,Wolter J H ,Roy W V ,Boeck J D ,Tang J M ,Flatte M E 2001 *Phys . Rev . B* **63** 195205
- [6] Kitchen D ,Richardella A ,Yazdani A 2005 *J . Supercond .* **18** 23
- [7] Frey T ,Maier M ,Schneider J ,Gehrke M 1988 *J . Phys . C* **21** 5539
- [8] Myers R C ,Poggio M ,Gossard A C ,Awschalom D D 2005 *Phys . Rev . Lett .* **95** 017204
- [9] Yu Z G ,Krishnamurthy S 2005 *Phys . Rev . B* **71** 5312
- [10] Hilton D J ,Tang C L 2002 *Phys . Rev . Lett .* **89** 6601
- [11] Kiselev A A ,Kim K W 2001 *Phys . Rev . B* **64** 125303
- [12] Rahimi M ,Sakr M R ,Kravchenko S V ,Dultz S C ,Jiang H W 2003 *Phys . Rev . B* **67** 081302
- [13] Crooker S A ,Awschalom D D 1997 *Phys . Rev . B* **56** 7574
- [14] Bergqvist L ,Mryasov O N 2003 *Phys . Rev . B* **67** 205201
- [15] Ogawa T ,Shirai M ,Suzuki N ,Kitagawa I 1999 *J . Magn . Magn . Mater .* **196—197** 428
- [16] Shirai M ,Ogawa T ,Kitagawa I ,Suzuki N 1998 *J . Magn . Magn . Mater .* **177—181** 1381
- [17] Maksimov A A ,Bacher G ,McDonald A ,Kulakovskii V D ,Forchel A 2000 *Phys . Rev . B* **62** R7767
- [18] Akhmediev N ,Ankiewicz A 2003 *Appl . Phys . Lett .* **82** 2661
- [19] Wojtowicz T ,Dietl T ,Sawicki M ,Plesiewicz W ,Jaroszynski J 1986 *Phys . Rev . Lett .* **56** 2419
- [20] Nagai Y ,Kuimoto T ,Nagasaka K ,Nojiri H ,Motokawa M ,Matsukura F ,Dietl T ,Ohno H 2001 *Jpn . J . Appl . Phys .* **40** 6231
- [21] Takeyama S ,Karczewski G ,Wojtowicz T ,Kossut J ,Kunimatsu H ,Uchida K ,Miura N 1999 *Phys . Rev . B* **59** 7327
- [22] Dietl T ,Ohno H ,Matsukura F 2001 *Phys . Rev . B* **63** 5205
- [23] Singley E J ,Burch K S 2003 *Phys . Rev . B* **68** 5204

Effects of external magnetic field on the effective g factor of (Ga ,Mn)As *

Zhou Rong Sun Bao-Quan[†] Ruan Xue-Zhong Gan Hua-Dong Ji Yang
Wang Wei-Zhu Zhao Jian-Hua

(State Key Laboratory for Superlattices and Microstructure , Institute of Semiconductors , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100083 , China)

(Received 28 November 2007 ; revised manuscript received 22 April 2008)

Abstract

With the help of time resolved magneto-optic Kerr rotation measurements , the optically induced spin precession in heavily doped diluted magnetic semiconductor $\text{Ga}_{0.937}\text{Mn}_{0.063}\text{As}$ was observed. It was found that the effective g factor increases with increasing magnetic field , which is attributed to the magnetic-field-induced increase of the density of the non-localized holes. Those free holes will couple with the localized magnetic ions by p-d interactions , leading to the formation of spontaneous magnetization in $\text{Ga}_{0.937}\text{Mn}_{0.063}\text{As}$, which in turn to the enhancement of the effective g factor.

Keywords : time resolved Kerr rotation measurement , Zeeman effect , Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida model

PACC : 7550 , 7130 , 7280E

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10334030 , 60676054).

[†] E-mail : bqsun@red.semi.ac.cn