

本征 GaAs 量子阱中电子自旋扩散运输的 时-空分辨吸收光谱研究*

余华梁 张秀敏 滕利华 文锦辉 林位株 赖天树†

(中山大学光电材料与技术国家重点实验室, 物理科学与工程学院, 广州 510275)

(2008 年 9 月 23 日收到, 2008 年 11 月 12 日收到修改稿)

发展了一种时-空分辨圆偏振光抽运-探测光谱及其理论, 并用于本征 GaAs 量子阱中电子自旋扩散运输的实验研究. 获得室温下本征 GaAs 量子阱中的“自旋双极扩散系数”为 $D_{\text{ss}} = 37.5 \pm 15 \text{ cm}^2/\text{s}$. 此结果比用自旋光栅法测量到的掺杂 GaAs 量子阱中电子自旋扩散系数小. 解释为是由于“空穴库仑拖曳”效应减慢了电子自旋波包的扩散运输.

关键词: 时-空分辨抽运-探测光谱, 电子自旋扩散, GaAs 量子阱

PACC: 7847, 7225, 7360L

1. 引 言

自旋电子器件受到广泛关注和研究, 因为它具有低功耗、体积小和速度快等优点, 在量子信息存储和处理方面具有潜在的广泛应用价值^[1]. 这些应用均涉及电子自旋的空间传递, 即运输, 要求自旋极化具有足够的输运尺度. 因而, 研究半导体中自旋输运不仅具有科学意义, 而且更具有重要的应用价值. 然而, 由于自旋输运问题的复杂性, 国际上对它的理论和实验研究报道均不多. GaAs 量子阱是制做高效率发光器件的重要材料, 在制做未来的自旋量子器件(如量子发光器件)中, 同样具有重要的应用价值. 但对它的自旋输运研究的报道很少. Weng 等^[2]理论上研究了 n-GaAs 量子阱中电子自旋输运, 预计电子自旋输运长度仅几个微米. Cameron 等人^[3]利用瞬态密度光栅和自旋光栅法分别实验研究了室温下 p-GaAs 量子阱的双极电荷扩散运输和电子自旋扩散运输过程, 发现电子自旋扩散系数 D_{s} ($D_{\text{s}} = 127 \text{ cm}^2/\text{s}$) 远大于电荷双极扩散系数 D_{a} ($D_{\text{a}} = 13.3 \text{ cm}^2/\text{s}$) 并认为自旋扩散系数等于电子扩散系数 D_{e} . Awschalom 小组^[4]采用自旋光栅和四探针法研究了室温和低温下 n-GaAs/AlGaAs 量子阱中电子自旋输运现象, 发现自旋光栅法测量的电子自旋扩散系数

D_{s} 小于四探针法测量的电子扩散系数 D_{e} , 但与 Cameron 等人在室温下测量的 D_{s} 一致, 认为是“自旋库仑拖曳 (spin Coulomb drag)”效应减慢了自旋扩散运输. Carter 等人^[5]采用自旋光栅和密度光栅法研究了低温下 n-GaAs/AlGaAs 量子阱中电子自旋和电荷扩散运输现象及其随温度、激发电子浓度和激发光子能量的变化, 获得的低温下电荷扩散和电子自旋扩散系数都比室温下的小, 与 Awschalom 小组的温度依赖测试结果一致, 自旋扩散的浓度依赖结果显示 D_{s} 随激发浓度增加而增大. Cameron 等人在 p-GaAs 量子阱中获得的室温 D_{s} 值与 Awschalom 小组在 n-GaAs 量子阱中获得的室温 D_{s} 值一致, 似乎表明 D_{s} 值与掺杂类型无关. 那么, 无掺杂的本征 GaAs 量子阱中 D_{s} 值是否也如此呢? 目前尚无此实验结果报道. 另外, 更重要的是空穴对电子自旋扩散运输是否有影响? 因为半导体自旋电子器件中自旋极化电子与空穴是可能同时注入的. 本文正是对此问题开展研究, 发展了一种焦平面上高分辨、线性光斑扫描技术, 并应用于自旋扩散运输实验研究.

2. 实验方法与结果

自旋光栅法是目前广泛使用的一种自旋输运实验研究方法, 但这种方法的缺点是实验光路较复杂,

* 国家自然科学基金(批准号: 60490295, 60678009, 10674184, 10874247)和高等学校博士学科点专项科研基金(批准号: 20050558030)资助的课题.

† 通讯联系人, E-mail: stslts@mail.sysu.edu.cn

需要三束光,其中两束抽运光,一束探测光.同时,三束光之间还需要满足相位匹配条件.另外,探测信号微弱,因为信号来自电子自旋极化调制感应的微弱的圆二色折射率调制,衍射效率很低.并且,这种测试方法物理图像上也不直观.更重要的是这种方法注入的自旋波包中不存在电荷梯度,电中性条件处处始终成立,所以,空穴对电子自旋极化扩散运输影响显示不出来.本文发展一种物理图像直观、实验光路简单的自旋运输实验方法.它能够同时点注入自旋极化电子和空穴,因而可观测空穴是否对电子自旋运输有影响.所谓自旋运输即指自旋极化度的空间变化,而圆偏振光抽运-探测光谱则是对电子自旋极化灵敏的实验技术,因而,在样品上空间扫描圆偏振探测光斑,则可实验测量电子自旋极化的空间分布,可以测量出圆偏振光点注入的电子自旋极化的空间分布信息,进而获取自旋扩散系数.基于这一思想,本文发展了时-空分辨圆偏振光抽运-探测饱和吸收光谱.它是在传统的时间分辨圆偏振光抽运-探测饱和吸收光谱基础上增加抽运-探测光斑之间的相对位移扫描功能,实现自旋极化的时间和空间分辨实验测量.其实验原理如图 1 所示.图中虚线框表示通常的时间分辨圆偏振光抽运-探测光路,输出的相互平行的抽运和探测光束通过焦距 $f = 20$ mm、直径 $d = 25$ mm 的透镜聚焦于其焦平面与其主光轴(点画线所示)的交点上,而样品位于此焦平面上.如果使探测光斑相对抽运光斑在焦平面上扫描,则可以测量出圆偏振光点注入的电子自旋极化的空间分布信息,进而获取自旋扩散系数.传统的焦平面光斑扫描方法是扫描入射光的方向.设入射光束与聚焦透镜主光轴之间的夹角为 θ ,则其在焦平面上的聚焦光斑相对主光轴的位移为 $d = f \cdot \tan\theta$.扫描分辨率 $\Delta d = f \cdot \cot\theta \cdot \Delta\theta$ 由角分辨率 $\Delta\theta$ 确定.根据理论预测和已报道的掺杂 GaAs 量子阱的自旋扩散系数计

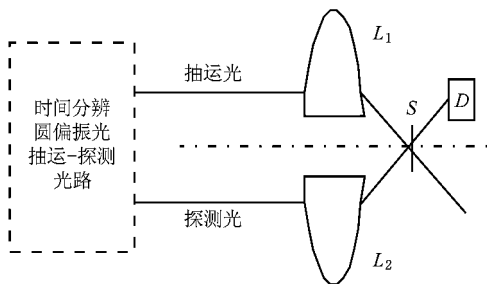


图 1 线性时-空高分辨抽运-探测实验光路图(D 为探测器, L_1 和 L_2 为同一透镜分割成的两半, S 为样品)

算可知自旋扩散长度不超过 $2 \mu\text{m}$.所以,扫描分辨率 Δd 至少要好于 $0.1 \mu\text{m}$,对应的角分辨率至少好于 $3/10000$ 度.如此高角分辨率的旋转平台是目前商业制造旋转台所不及的.因此,本文发展了一种新的焦平面高分辨率光斑扫描技术.将聚焦透镜沿直径切割、一分为二,如图 1 中 L_1 和 L_2 所示.抽运和探测光分别通过 L_1 和 L_2 聚焦.如果 L_1 和 L_2 的焦平面及主光轴重合,此时抽运和探测光束的聚焦光斑仍然在焦平面上重合.但当 L_1 垂直于光束移动扫描时,则抽运光束聚焦光斑会在焦平面上扫描,光斑扫描分辨率和位移量完全与 L_1 的相同.所以,是一种线性扫描.而目前的线性扫描平移台达到 $0.1 \mu\text{m}$ 分辨率是很容易的.本实验中使用 $0.02 \mu\text{m}$ 分辨率的平移台控制 L_1 扫描.

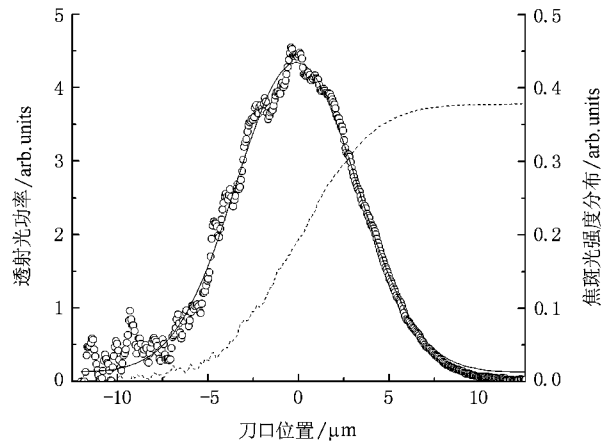


图 2 刀口法测定聚焦光斑尺寸(虚线代表透射光功率随刀口位置变化,空心圆点为虚线对刀口位置的微分,对应于聚焦光强度的空间分布)

图 2 为利用刀口扫描法测定的透射光功率随刀口位置变化的关系,刀口位于透镜焦平面上.其微分则为聚焦光斑的光强空间分布,如图 2 中空点所示.利用高斯函数拟合,如图 2 中粗实线所示,获得光斑的半高全宽直径约为 $6.7 \mu\text{m}$,与基于衍射理论计算的光斑尺寸一致.

实验样品是 GaAs/AlGaAs 多量子阱,它由 11 个周期的本征 GaAs(6 nm)/AlGaAs(10 nm)组成.衬底通过选择性腐蚀除去.样品吸附在宝石片上.室温下重空穴激子吸收能级约 1.50 eV ^[6].实验在室温下进行,因而调节钛宝石锁模激光器的中心波长到 830 nm .锁模脉冲宽度为 200 fs ,重复率为 90 MHz ,光束直径约 3 mm .

设置抽运功率为 5 mW ,抽运/探测强度比大于

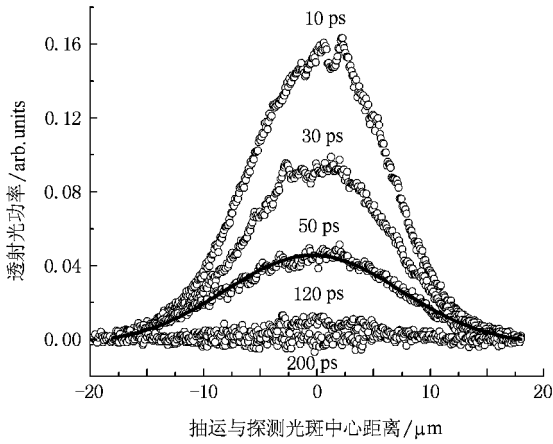


图3 电子自旋极化的时间延迟、空间分辨扫描曲线(空心圆点为实验结果,实线为高斯函数对延迟时间 50 ps 的自旋极化空间分布的拟合)

3. 通过 1/4 波片控制抽运和探测光的左、右旋圆偏振性,由计算机控制平移台扫描,实现抽运和探测光之间的时间和空间分辨扫描.对每一个抽运-探测延迟时间,进行两次空间分辨扫描测量,分别获得相同旋向和相反旋向圆偏振抽运-探测饱和和吸收信号随光斑扫描位置变化的曲线.然后用相同旋向曲线减去相反旋向曲线,获得自旋极化 $N_+ - N_-$ (其中 N_+ 和 N_- 是自旋取向相反的两个态的电子浓度)的空间分布曲线.图3所示给出了抽运-探测延迟时间为 10, 30, 50, 120, 200 ps 五个时刻的自旋极化的空间分布曲线.随着延迟时间增大,曲线的峰值随之减小,一方面由于电子-空穴复合,以及电子自旋弛豫,另一方面由于扩散.扩散使曲线峰值降低,同时曲线的宽度增大.由图3可见, $N_+ - N_-$ 的空间分布呈好的高斯型.因此,用高斯函数拟合它们(50 ps 曲线的拟合如实线所示),可获得各曲线的宽度.然而,此宽度并非真实的 $(N_+ - N_-)$ 的空间分布的宽度,而是 $(N_+ - N_-)$ 的空间分布与抽运-探测光斑的相关函数的卷积结果的宽度.因此,需要扣除抽运-探测光斑相关函数宽度的影响.将在下节分析中详述.

3. 实验结果分析与讨论

飞秒抽运脉冲注入的自旋极化电子的输运和弛豫过程可以用如下连续性方程来描述^[7]:

$$\frac{\partial (N_+ - N_-)}{\partial t} = D_s \nabla^2 (N_+ - N_-) - \frac{\alpha (N_+ - N_-)}{\tau_s} - \frac{N_+ - N_-}{\tau_r}, \quad (1)$$

其中 N_+ 和 N_- 代表自旋向上和自旋向下非平衡载流子的浓度, t 代表抽运-探测时间延迟, τ_r 为非平衡载流子的复合时间, τ_s 为自旋弛豫时间常数.方程(1)的解为

$$N_+ - N_- = (N_+ - N_-)_0 \frac{1}{4\pi D_s (t + t_0)} \times \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \exp\left[-\frac{r^2}{4D_s(t + t_0)}\right], \quad (2)$$

其中 $(N_+ - N_-)_0$ 为圆偏振抽运光注入的初始自旋极化, $\frac{1}{\tau} = \frac{2}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_r}$, t_0 决定了自旋包的初始宽度^[8], 由抽运光斑尺寸决定.在小信号近似下,二能级系统的吸收系数和透射光强可表为^[9]

$$\alpha^\pm(t, N_\pm) = \frac{\alpha_0}{1 + N_\pm/N_s} \approx \alpha_0 \left(1 - \frac{N_\pm}{N_s}\right), \quad (3)$$

$$I^\pm = I_0 e^{-\alpha^\pm L} \approx I_0 e^{-\alpha_0 L} \left(1 + \alpha_0 L \frac{N_\pm}{N_s}\right) = I_{10} \left(1 + \alpha_0 L \frac{N_\pm}{N_s}\right), \quad (4)$$

其中 $I_{10} = I_0 \exp(-\alpha_0 L)$, I^+ 和 I^- 分别为左和右旋圆偏振光的透射光强, N_s 为体系的激发态饱和和布居密度.左右旋圆偏振探测光的透射光强变化率之差为

$$\frac{I^+ - I_{10}}{I_{10}} - \frac{I^- - I_{10}}{I_{10}} = \frac{\alpha_0 L (N_+ - N_-)_0}{N_s 4\pi D_s (t + t_0)} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \times \exp\left[-\frac{r^2}{4D_s(t + t_0)}\right]. \quad (5)$$

上式表明,对同一圆偏振抽运光注入的自旋极化,用两种不同旋向圆偏振探测光空间扫描测量到的信号之差是高斯型的,与图3所示一致.

如上节末所述,图3中实验曲线是抽运-探测光斑的空间相关与自旋极化的空间分布 $(N_+ - N_-)$ 的卷积结果.但由于抽运光斑尺寸已作为方程(1)解的初始条件,在方程(2)的解中,以 t_0 参数计入,如方程(5)中 t_0 参数所示.所以,图3的实验结果应该是方程(5)与探测光斑的空间分布的卷积.而方程(5)和探测光斑空间分布均为高斯分布,它们的卷积仍为高斯型分布.卷积函数的空间宽度的平方等于被卷积两函数的空间宽度平方之和.

取标准高斯函数形式为

$$y = y_0 + \frac{A}{w\sqrt{\frac{\pi}{2}}} \exp\left[-2\frac{(x - x_0)^2}{w^2}\right], \quad (6)$$

其中 w 为高斯函数的宽度.

对比方程 (5), 可得其宽度为 $w_1^2 = 8D_s(t + t_0)$
 $= 8D_s t + w_0^2$, 其中 $w_0 = \sqrt{8D_s t_0}$ 对应于抽运光斑尺寸. 设用方程 (6) 拟合图 2 中光斑强度分布曲线获得的宽度为 w_2 , 拟合图 3 的分布曲线获得的宽度为 w , 则由上述高斯函数卷积性质可得

$$w^2 = w_1^2 + w_2^2 = 8D_s t + w_0^2 + w_2^2. \quad (7)$$

利用 (6) 式拟合类似图 3 中的一系列延迟时间的自旋极化空间扫描曲线, 获得与各延迟时间 t 对应的宽度平方 w^2 , 代入 (7) 式得到 w_1^2 对延迟时间 t 变化关系, 如图 4 中点所示. 利用方程 $w_1^2 = 8D_s t + w_0^2$ 最优化线性拟合所有实验点, 如实线所示. 得到电子自旋的扩散系数 $D_s = 37.5 \pm 15 \text{ cm}^2/\text{s}$.

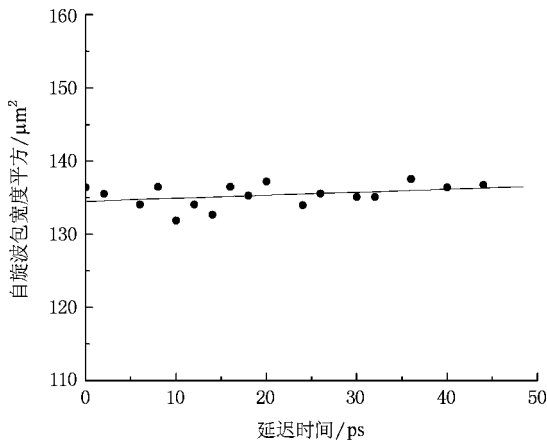


图 4 自旋波包宽度平方 w_1^2 对延迟时间的依赖关系(实线为线性拟合)

本实验结果明显小于 Cameron 等人和 Awschalom 小组用瞬态自旋光栅法获得的掺杂 GaAs/AlGaAs 量子阱中室温下的电子自旋扩散系数(约 $130 \text{ cm}^2/\text{s}$). 那么, 这种差别是什么原因引起的呢? 本实验与 Cameron 等人和 Awschalom 小组的实验差别主要在两个方面. 一是样品为本征型; 二是测试方法不同. Cameron 等人在 p-GaAs/AlGaAs 和 Awschalom 小组在 n-GaAs/AlGaAs 中测试到的自旋扩散系数接近, 表明掺杂对自旋扩散系数的影响似乎不是很明显. 那么, 我们推测结果的明显差别主要来自测试方法. 本实验中使用圆偏振光点注入自旋极化波包, 使用探测光斑空间扫描测试注入自旋波包的扩散运输. 在这种自旋注入方式中, 同时注入了空穴自

旋波包, 但由于空穴自旋弛豫非常快, 在亚皮秒量级^[10], 所以, 空穴自旋波包近似为正电荷波包. 因而, 本实验中实际包括空穴的电荷运输和电子的自旋运输. 而在瞬态自旋光栅实验中, 注入的空穴对电子自旋运输的影响是可以忽略的. 换句话说讲, 本实验中测试的自旋扩散系数类似电荷双极扩散系数, 但电子是自旋极化的, 所以, 本文称为“自旋双极扩散系数”. 由于电子的扩散系数大于空穴的, 所以, 扩散电子波包的波前附近是电子数量占优的, 而内部是空穴数量占优的, 因此, 在电子自旋波包内会形成内建库仑电场. 此内建库仑电场对自旋电子波包的波前会产生“空穴库仑拖曳”效应, 类似 Awschalom 小组发现的“自旋库仑拖曳”效应, 使电子自旋扩散运输减慢. 因而, 本文测试的自旋扩散系数小于自旋光栅法测试的自旋扩散系数是合理的. 但由于相同注入电子浓度下, 自旋极化电子包中多数自旋电子浓度梯度大于非自旋极化电子浓度梯度, 所以, “自旋双极扩散系数”应该大于电荷双极扩散系数, 因为扩散运输是浓度梯度驱动的. 所以, 本文测量到的“自旋双极扩散系数”位于电子自旋扩散系数和电荷双极扩散系数之间是合理的. 我们的结果提示, 如果实际的自旋电子器件涉及自旋极化空穴与电子的同时注入, 用自旋光栅法测得的自旋扩散系数来估算自旋扩散运输长度可能会高估材料的自旋扩散能力.

4. 结 论

发展了一种时-空分辨圆偏振光抽运-探测光谱及其理论. 通过将聚焦透镜一分为二, 圆偏振抽运和探测光束各自通过其一聚焦. 当两个半透镜的焦平面重叠时, 使抽运光束通过的半透镜沿垂直于光束方向扫描, 则可实现探测光斑与抽运光斑在焦平面上的高分辨线性扫描, 从而实现自旋极化运输的空间分辨测量. 利用这种实验技术测试了本征 GaAs 量子阱在室温下的自旋双极扩散系数, 其值明显小于自旋光栅法测试的掺杂 GaAs 量子阱中电子自旋扩散系数. 解释为“空穴库仑拖曳”效应. 这种效应起源于空穴的扩散系数小于电子的自旋扩散系数. 如果实际的自旋电子器件中自旋极化电子和空穴同时注入, 空穴对电子自旋运输的影响是不能排除的.

- [1] Zutic I , Fabian J , Sarma S D 2004 *Rev. Mod. Phys.* **76** 323
- [2] Jiang L , Weng M Q , Cheng J L , Wu M W 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 113702
- [3] Cameron A R , Riblet P , Miller A 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 4793
- [4] Weber C P , Gedik N , Moore J E , Orenstein J , Stephens J , Awschalom D D 2005 *Nature* **437** 1330
- [5] Carter S G , Chen Z , Cundiff S T 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 136602
- [6] Wu Y , Jiao Z X , Lei L , Wen J H , Lai T S , Lin W Z 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2961 (in Chinese) [吴 羽、焦中兴、雷 亮、文锦辉、赖天树、林位株 2006 物理学报 **55** 2961]
- [7] Sogawa T , Ando H , Ando S 2000 *Physica E* **7** 1020
- [8] Kikkawa J M , Awschalom D D 1999 *Nature* **397** 139
- [9] Lai T S , Liu L N , Shou Q , Lei L , Lin W Z 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 4040
- [10] Hilton D J , Tang C L 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 146601
- [11] Jiang Z F , Li R D , Zhang S C , Liu W M 2005 *Phys. Rev. B* **72** 045201

Study of electron spin diffusion transport in intrinsic GaAs quantum wells by time- and space-resolved absorption spectroscopy^{*}

Yu Hua-Liang Zhang Xiu-Min Teng Li-Hua Wen Jin-Hui Lin Wei-Zhu Lai Tian-Shu[†]

(State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies , School of Physics and Engineering ,
Sun Yat-Sen University , Guangzhou 510275 , China)

(Received 23 September 2008 ; revised manuscript received 12 November 2008)

Abstract

A time- and space-resolved circularly polarized pump-probe spectroscopy and its theory are developed , and are used experimentally to study electron spin diffusion transport in intrinsic GaAs quantum wells . The ambipolar spin diffusion coefficient of $D_{\text{as}} = 37.5 \pm 15 \text{ cm}^2/\text{s}$ is obtained at room temperature , and is smaller than that in a doped GaAs quantum well obtained by spin grating . The difference is explained based on “ hole Coulomb drag ” effect which slows the diffusion transport of electron spin packet .

Keywords : time-and space-resolved pump-probe spectroscopy , electron spin diffusion , GaAs quantum well

PACC : 7847 , 7225 , 7360L

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60490295 , 60678009 , 10674184 , 10874247) , and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20050558030) .

[†] Corresponding author . E-mail : stslts@mail.sysu.edu.cn