

半导体量子阱中电子自旋弛豫和动量弛豫^{*}

吴 羽 焦中兴 雷 亮 文锦辉 赖天树 林位株[†]

(中山大学光电材料与技术国家重点实验室 物理系, 广州 510275)

(2005 年 11 月 26 日收到, 2005 年 12 月 21 日收到修改稿)

根据电子自旋轨道耦合对自旋极化弛豫影响的 DP 机理进一步导出了半导体中电子自旋弛豫与动量弛豫及载流子浓度的关系, 并采用飞秒抽运探测技术在室温下测量 AlGaAs/GaAs 多量子阱中载流子浓度在 $1 \times 10^{17} \sim 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 范围内, 电子自旋弛豫时间由 58 ps 增加至 82 ps 的变化情况, 与理论计算值符合, 说明了随着载流子浓度的增加, 载流子间的频繁散射加速了电子动量弛豫, 减弱了电子自旋轨道耦合作用, 从而延长了电子自旋寿命.

关键词: 电子自旋轨道耦合, 电子自旋弛豫和动量弛豫, 飞秒光谱技术

PACC: 7170E, 6740F, 7847

1. 引 言

近年来 III-V 族半导体量子阱中的载流子自旋弛豫引起了人们的极大兴趣, 未来的电子自旋器件是要利用半导体及其量子阱结构中的电子自旋的极化态作为信息载体和逻辑位, 实现自旋开关和量子计算^[1,2]. 这就要求电子自旋极化态具有适当的寿命和空间输运距离. 半导体中的电子自旋极化态寿命, 即自旋极化弛豫过程比较复杂, 因为电子和空穴都带有自旋极化而且自旋弛豫会受到温度、掺杂浓度、维度、磁场和电场等的影响. 人们对半导体材料中的电子自旋弛豫已进行过许多研究, 确立了几种不同的弛豫机理^[3-7], 目前人们认为室温下缺失中心反演对称性的 III-V 族闪锌矿材料的导带电子自旋弛豫机理为 D'yakonov-Perel (DP) 机理, 并且研究了自旋弛豫与电子过超能量的关系^[7]. 自旋弛豫时间的探测亦已从最初的时间分辨荧光探测发展至基于自旋偏振的瞬态透射或反射的飞秒抽运探测技术^[8-10]. 然而, 有关自旋弛豫与动量弛豫及载流子浓度的关系尚缺乏理论和实验的研究. 本文根据电子自旋轨道耦合对自旋极化弛豫影响的 DP 机理进一步导出半导体中电子自旋弛豫时间与动量弛豫时间及载流子浓度的关系, 并采用飞秒抽运探测技术在室温下和通常的载流子浓度范围内 ($1 \times 10^{17} \sim 1 \times$

10^{18} cm^{-3}) 测量了 AlGaAs/GaAs 多量子阱中电子自旋弛豫时间的变化规律, 这一变化规律和理论预期很好的符合, 说明了随着载流子浓度的增加, 载流子间的频繁散射加速了电子动量弛豫, 减弱了电子自旋轨道耦合作用, 从而延长了电子自旋寿命.

2. 原 理

半导体中电子自旋极化(取向)会因自旋轨道耦合作用而随机化, 这一时间过程称为电子自旋弛豫时间或自旋寿命. 电子自旋轨道耦合作用是指在单电子原子中, 核电荷相对于电子运动, 从而产生了所谓的有效内磁场 B , 电子的内禀磁矩 μ_s 在这个内磁场中将受到以 $-\mu_s B$ 表示的作用, 由于磁场 B 与电子的轨道角动量有关, 因此这一作用与电子的动量有关. 电子自旋绕有效磁场 $B(k)$ 进动, 表现为自旋轨道耦合作用. 由系统的哈密顿量可知, 这一作用使缺失中心反演对称性的 III-V 族闪锌矿半导体材料的导带自旋简并能级产生分裂, 相当于塞曼分裂, 其分裂能量正比于电子波矢 k 的立方并与材料的取向有关^[11]. 自旋能级分裂导致自旋极化的弛豫. 由于半导体中载流子之间、载流子和晶格以及杂质之间的散射, 使电子波矢的方向变为 k' , 自旋的进动轴也随之改变为 $B(k')$. 即电子波矢的随机化导致有效磁场的随机化, 自旋轨道耦合作用减弱,

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 10274107, 60178020, 60378006)和国家自然科学基金重大项目(批准号: 60490290)及广东省自然科学基金项目(批准号: 04009736)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: stslwz@zsu.edu.cn

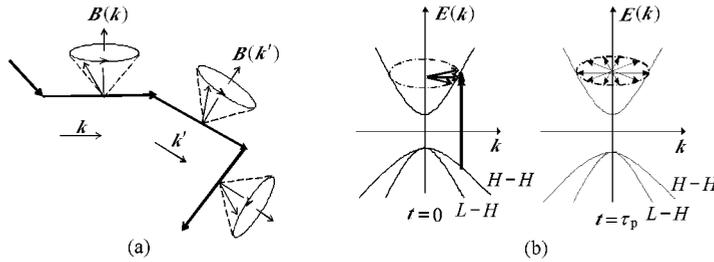


图 1 电子自旋弛豫(a)与动量弛豫(b)示意图

则总体的自旋极化弛豫过程就会变慢,其情况如图 1(a)所示.图 1(b)表示半导体中圆偏振光注入的自旋极化电子在动量空间的初始各向异性布居经初始散射后动量取向随机化的过程.对一个动量为 k 的电子,它的自旋绕有效磁场 $B(k)$ (自旋进动轴)的进动频率 $\Omega = \mu_{sg}B/\hbar$,其中 g 为材料的 g 因子.电子自旋的进动频率越快,散射事件发生得越频繁(动量弛豫时间越短),自旋轨道耦合作用越弱,自旋弛豫时间就越长,这就是电子自旋的弛豫 DP 机理.自旋弛豫速率可表示为^[12]

$$\tau_s^{-1} \sim \Omega^2 \tau_p, \quad (1)$$

其中 τ_p 为电子的动量弛豫时间. D'yakonov 等^[13,14]将 DP 理论推广到二维量子阱,在非简并载流子布居的前提下得到了反比于动量弛豫时间的二维电子自旋弛豫时间 τ_s 表达式,即

$$\frac{1}{\tau_s^{DP}} = \frac{\chi \alpha E_{1c}/\hbar}{E_g k_B T} \int_0^\infty E \tau_p(E) \exp(-E/k_B T) dE, \quad (2)$$

其中 E_{1c} 为量子阱中第一电子束缚态能量, E_g 是带隙能量, E 为电子能量, T 为绝对温度, k_B 为玻尔兹曼常数. α 是导带能级分裂系数, $\alpha = \gamma \hbar^{-3} (E_g)^2 (2m^*)^{3/2}$, $m^* = 0.067m_0$ 为电子有效质量, m_0 为自由电子质量.如果忽略电子的动量弛豫时间 $\tau_p(\epsilon)$ 对能量 ϵ 的依赖关系,那么(2)式可以简化为

$$\frac{1}{\tau_s^{DP}} = \frac{2\alpha^2 E_{1c}^2 k_B T}{E_g \hbar^2} \tau_p. \quad (3)$$

一般情况下,自旋弛豫比动量弛豫要慢的多,后者在飞秒量级,前者可以是皮秒量级.这是因为动量弛豫通常是载流子与载流子、声子和杂质等的散射作用导致的,这些散射作用使波矢的方向平均化,幅度衰减,从而失去彼此的相位关联.而在载流子的碰撞中,自旋的极化方向并不一定改变,从而能够较长时间保持净的自旋极化态.通常来说,自旋的

改变需要通过自旋本身的磁矩与外或内磁场的相互作用,或者两种自旋(电子自旋与核自旋)的交换作用而实现.然而,在 DP 机理中,自旋极化方向的随机化过程来自有效磁场 $B(k)$ 进动轴的改变,而这一过程直接源于动量散射,所以动量散射在自旋弛豫过程中起到了重要作用.动量弛豫时间可以写为^[15]

$$1/\tau_p = \frac{-V}{(2\pi)^3} \int_0^\infty W(k, k') (\cos\chi - 1) dk', \quad (4)$$

其中 V 表示晶体体积, $W(k, k')$ 表示从初始状态 k 到末状态 k' 的散射速率.这里利用了 k 和 k' 之间变换而不改变结果的弹性散射近似. χ 是 k 和 k' 之间的夹角.在杂质弹性散射近似下,由(4)式可导出

$$\tau_p = \frac{8\pi \hbar^3 \epsilon_0^2 \epsilon^2 k^3}{Nm^* e^4} \times \frac{1}{[\ln(1+(2kL_D)^2)] - (2kL_D)^2 [1+(2kL_D)^2]} \quad (5)$$

上式中德拜长度 L_D 由温度和载流子浓度决定: $L_D = (\epsilon \epsilon_0 k_B T / e^2 N)^{1/2}$, N 为载流子浓度, ϵ_0, ϵ 分别为真空和介质中的介电常数.

由(5)式可知动量弛豫时间与载流子浓度密切相关,因为电子的动量弛豫是由电子间碰撞散射引起的,载流子浓度的增加会加速电子间散射从而加快了电子的动量弛豫速率.因此,要得到自旋弛豫与动量弛豫的具体关系,实验上可以通过改变载流子浓度的方法.由(3)(5)式得出自旋弛豫时间与载流子浓度的关系式

$$\frac{1}{\tau_s^{DP}} = \frac{16\alpha^2 E_{1c}^2 k_B T}{E_g m^* e^4} \times \frac{\pi \hbar \epsilon_0^2 \epsilon^2 k^3}{N \cdot [\ln(1+(2kL_D)^2) - (2kL_D)^2 (1+(2kL_D)^2)]} \quad (6)$$

根据上式可以导出 τ_s 随浓度 N 的非线性变化情况.我们取实验中相关参数:对 GaAs,取 $N = 5 \times$

10^{17} cm^{-3} , $\mu_k = 1.51 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$, $\epsilon = 11$, $\gamma = 6.3 \text{ eV} \cdot \text{\AA}^{3[7]}$, $E_g = 1.42 \text{ eV}$, $\alpha = 0.018$, $E_{1e} = 74 \text{ meV}$, $T = 300 \text{ K}$, 计得 $L_D = 7.2 \text{ nm}$, 电子自旋弛豫时间为 85 ps . 其他载流子浓度的情况见图 3.

3. 实 验

为了进一步验证这一理论计算, 我们采用飞秒抽运探测技术测量了载流子浓度在 $1 \times 10^{17} - 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 范围内变化时自旋弛豫时间的变化情况. 由自锁模钛宝石激光器发出的中心波长 830 nm , 脉宽 125 fs 的线偏振飞秒脉冲经分束器分为抽运光和探测光. 这两束光分别通过光学延迟系统后一起通过一个 $1/4$ 波片和透镜会聚于样品上. 同时, 在抽运光束中置一 $1/2$ 波片. 通过调节 $1/4$ 波片和 $1/2$ 波片我们可以得到两种不同的偏振情况, 即可以实现同向圆偏振和反向圆偏振抽运-探测测量. 由光电探测器、锁相放大器和计算机获取的圆偏振探测光经样品吸收后透射强度的相对变化量即为输出信号. 我们在总光路上添加一个连续可调节衰减器, 用来改变抽运和探测脉冲光强, 从而达到控制激发载流子浓度的目的. 实验中所用的多量子阱样品由分子束外延方法 (MBE) 生长, 由 $\text{Ga}_{0.7}\text{Al}_{0.3}\text{As}$ (10 nm) 和 GaAs (6 nm) 交叠 11 层组成. 样品的衬底和缓冲层用研磨和化学腐蚀方法除去, 再把样品粘贴于透明的宝石片上. 由宇称守恒的跃迁定则可知, 中心波长为 830 nm 的右旋圆偏振激发脉冲光刚好能在导带中产生自旋极性向下的电子布居, 而相对延时的探测光则能检测这一电子布居的衰变情况.

图 2 给出了载流子激发浓度为 $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 时, 探测脉冲透射强度相对变化随延迟改变的情况. 图中标注为 (σ_+, σ_+) 的曲线为右旋圆偏振光激发、右旋圆偏振光探测的透射强度的变化曲线, 反映了由于自旋退极化和电子复合引起初始自旋极化向下电子布居数的衰减. 标注为 (σ_+, σ_-) 的曲线为右旋圆偏振光激发, 左旋圆偏振光探测的透射光强变化. 该信号逐渐增强, 表明自旋向上极化电子布居密度随时间增加. 曲线中初始尖峰的持续时间与激光脉冲宽度具有相同的数量级, 只有当激发光脉冲和探测光脉冲相重叠时才出现, 称为相干假象. 在 140 ps 处, 两条曲线的变化趋于一致, 并延续至几百皮秒, 反映了电子布居的缓慢复合过程. 在 140 ps 之前, 上述两条表征自旋极化向下和向上的电子布居演化的

曲线可用下式表述^[16]:

$$N_{\pm} = \frac{N_0}{2} (1 \pm e^{-\frac{2t}{\tau_s}}) e^{-\frac{t}{\tau_r}}, \quad (7)$$

其中 N_0 为初始受激载流子浓度, τ_s, τ_r 分别为电子自旋弛豫和复合时间. (7) 式括号中“+”号表示 (σ_+, σ_+) 情况, “-”号表示 (σ_+, σ_-) 情况. 用 (σ_+, σ_+) 曲线减去 (σ_+, σ_-) 曲线便得到图 2 内插图所示的电子自旋弛豫曲线, 这是因为电子复合时间约为 1 ns , 比自旋弛豫时间长得多. 曲线 a, b, c 分别表示载流子浓度为 $1 \times 10^{17}, 5 \times 10^{17}, 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 时的自旋弛豫曲线, 相应的自旋弛豫时间为 $58, 78, 82 \text{ ps}$. 图 3 圆点示出在载流子浓度 $1 \times 10^{17} - 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 范围内, 电子自旋弛豫时间随载流子浓度的增加而增长的情况, 其中误差线示明数据点的均方根误差. 这一实验结果与由 (6) 式得到的理论计算曲线 (图 3 之实曲线) 符合. 这一结果亦与 Takeuchi 等有关 AlGaAs/GaAs 量子阱电子自旋弛豫时间与过超能量关系的相应计算值 80 ps ^[14] 相当.

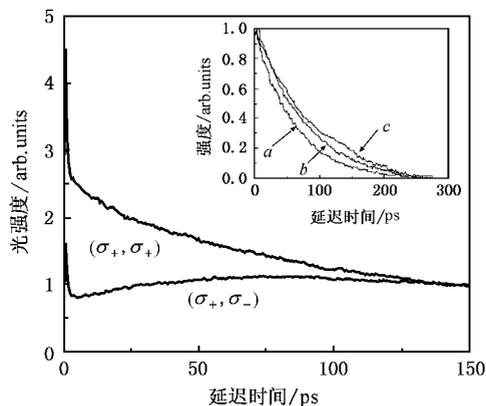


图 2 GaAs 多量子阱圆偏振泵抽运-探测曲线. 小图为不同载流子浓度下的纯自旋弛豫时间曲线, 曲线 a, b, c 分别表示载流子浓度为 $1 \times 10^{17}, 5 \times 10^{17}$ 和 $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, 相应的自旋弛豫时间为 $58, 78, 82 \text{ ps}$.

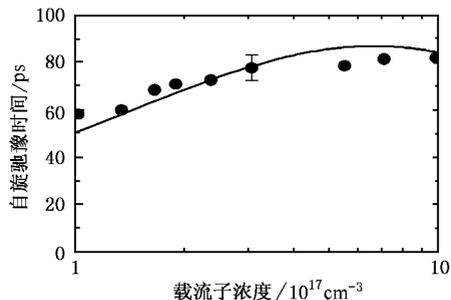


图 3 电子自旋弛豫时间与载流子浓度的关系. 圆点表示实验数据点, 实线表示 DP 理论曲线.

4. 结 论

综上所述,在通常的载流子浓度下,载流子-载流子、载流子-光声子散射是无屏蔽散射,电子波矢 k 在动量空间保持了相当的极性分布. 散射使波矢方向随机化,同时也使有效磁场 $B(k)$ 的方向随机化. 载流子浓度的增加会导致载流子间碰撞散射增

强,从而使电子波矢的随机化增强,自旋轨道耦合作用减弱,电子自旋弛豫时间就延长了. 我们采用飞秒抽运探测技术在室温下和通常的载流子浓度范围内测量了 AlGaAs/GaAs 多量子阱中电子自旋弛豫时间随载流子浓度的变化规律,这一变化规律和上述理论预期符合. 这一结果对认识和应用量子阱中电子自旋的注入和弛豫动力学过程具有重要参考价值.

- [1] Wolf S A , Awshalom D D , Buhrman R A , Daughton J M , Molnár S Von , Roukes M L , Chtchelkanova A Y , Treger D M 2001 *Science* **294** 1488
- [2] Sarma S D , Fabian J , Hu X D , Zutic I 2001 *Solid State Commu.* **119** 207
- [3] Pershin Y V , Privman V 2004 *Phys. Rev. B* **69** 073310
- [4] Song P H , Kim K W 2002 *Phys. Rev. B* **66** 035207
- [5] Sandhu J S , Heberle A P , Baumberg J J , Cleaver J R A 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 2150
- [6] Fabian J , Sarma S D 1999 *J. Vac. Sci. Technol. B* **17** 1708
- [7] Tackeuchi A , Wada O 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 1131
- [8] Lai T S , Liu L N , Shou Q , Lei L , Lin W Z 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 4040
- [9] Britton R S , Grevatt T , Malinowski A , Harley R T 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 2140
- [10] Sun F W , Deng L , Shou Q , Liu L N , Wen J H , Lai T S , Lin W Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3196 (in Chinese) [孙丰伟、邓莉、寿倩、刘鲁宁、文锦辉、赖天树、林位株 2004 物理学报 **53** 3196]
- [11] Cardona M , Christensen N E , Fasol G 1988 *Phys. Rev. B* **38** 1806
- [12] Brand M A , Malinowski A , Karimov O Z , Marsden P A , Harley R T 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 236601
- [13] D'yakonov M I , Kachorovski V Yu 1986 *Sov. Phys. Semicond.* **20** 110
- [14] Tackeuchi A , Kuroda T , Muto S , Nishikawa Y , Wada O 1999 *Jpn. J Appl. Phys.* **38** 4680
- [15] Zhang H C , Deng L , Wen J H , Liao R , Lai T S , Lin W Z 2001 *Science in China Ser. A* **44** 1340
- [16] Lai T S , Liu L N , Lei L , Shou Q , Li X Y , Wang J H , Lin W Z 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 967 (in Chinese) [赖天树、刘鲁宁、雷亮、寿倩、李熙莹、王嘉辉、林位株 2005 物理学报 **54** 967]

Electron spin relaxation and momentum relaxation in semiconductor quantum wells^{*}

Wu Yu Jiao Zhong-Xing Lei Liang Wen Jin-Hui Lai Tian-Shu Lin Wei-Zhu[†]

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

(Received 26 November 2005 ; revised manuscript received 21 December 2005)

Abstract

The dependence of electron spin relaxation on the momentum relaxation and carrier density are investigated based on the spin-orbit coupling and D'yakonov-Perel relaxation mechanism. Experimental results obtained by using femtosecond pump-probe technique in AlGaAs/GaAs multiple quantum wells at room temperature show that the spin relaxation time increases from 58 to 82ps with the carrier density increases from 1×10^{17} to $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, consistent with the theoretical prediction. This results reveals that with the increase of the carrier density, the spin-orbit interaction reduces due to more frequent momentum scattering, so that the spin relaxation time prolongs.

Keywords : spin-orbit coupling, electron spin relaxation and momentum relaxation, femtosecond spectroscopy

PACC : 7170E, 6740F, 7847

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10274107, 60178020, and 60378006), the Major Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60490290), and the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (Grant No. 04009736).

[†] E-mail : stslwz@zsu.edu.cn