

分类号_____

密级_____

UDC _____

编号_____

中国科学院研究生院

博士学位论文

半导体中自旋动力学和自旋操控的实验研究

叶慧琪

指导教师刘宝利 副研究员

中国科学院物理研究所

申请学位级别理学博士 学科专业名称凝聚态物理

论文提交日期2012 年 4 月 论文答辩日期_____

培养单位中国科学院物理研究所

学位授予单位中国科学院研究生院

答辩委员会主席_____

半导体中自旋动力学和自旋操控的实验研究

中文摘要

在半导体中, 自旋-轨道耦合 (Spin-orbit coupling, SOC) 对自旋动力学影响非常大, 并且正是由于自旋-轨道耦合的存在使得电学操控自旋成为可能。本文的主要工作就是研究半导体及其二维结构的自旋动力学过程。我们研究的材料主要集中在闪锌矿结构的 GaAs 和 GaN 中, 在这类材料中尤其高温区域 D'Yakonov-Perel (DP) 自旋弛豫机制起主导作用。根据 DP 机制, 我们可以通过选取特殊的晶体取向、能带结构工程 and 外加电场等方式对自旋动力学过程进行控制。本论文工作的平台是超快实验室, 使用的实验手段主要是时间分辨克尔旋转技术, 辅助手段有光致荧光光谱、半导体微纳加工技术、电学测试等。

本论文的主要研究内容和成果分为以下三个部分:

一、(001) 取向 GaAs/AlGaAs 不对称量子阱中自旋动力学的各向异性研究。

我们采用了势垒铝组分渐变和单边调制掺杂两种形式在 (001) 取向 GaAs/AlGaAs 量子阱中引入结构不对称性。

在势垒铝组分渐变引起的倾斜势垒不对称量子阱中, 我们详细研究了在外加磁场下, 面内自旋分裂的各向异性。这种各向异性是 Dresselhaus 项加上量子阱不对称限制势共同作用的结果。但是我们在这种不对称量子阱中没有观察到自旋弛豫的各向异性, 这表明在这种不对称量子阱中不存在可观测的 Rashba 项。此结果发表在 *Nanoscale Research Letters* **2011**, 6, 520。

在单边调制掺杂引起的不对称量子阱中, 我们同时观察到了自旋弛豫和自旋进动的各向异性。在高温区域, 自旋进动各向异性消失, 这和势垒合金组分不对称量子阱的结果一致; 同时面内自旋弛豫各向异性也消失, 但垂直方向自旋弛豫速率比面内的要快, 这需要考虑 Dresselhaus 三次方项的影响。

二、(111) 取向 GaAs/AlGaAs 量子阱中自旋动力学的实验研究。

我们研究了 (111) 取向 GaAs/AlGaAs 多量子阱中自旋动力学的电学操控。发现在 (111) A 和 (111) B 衬底生长的样品中, 自旋寿命都能通过外加偏压

被极大地延长,但是在(111)A样品中电场方向需要指向生长方向,而在(111)B中则相反。自旋寿命的延长是由于外电场引起的 Rashba 项与 Dresselhaus 项相互抵消,抑制了 DP 机制。实验结果表明生长方向对自旋动力学影响很大,这对实现(111)二维纳米结构的自旋电子器件有重要意义。此结果已经提交到 Applied Physics Letters, 正在审稿中。

我们还研究了一对倾斜势垒(111)不对称量子阱。两块样品的自旋寿命在低温下出现很大的偏离。这是界面反转不对称 (IIA) 项和 Dresselhaus 线性项相互作用的结果。两块样品自旋寿命的差别逐渐减小,当 $T > 100\text{K}$ 时基本消失,这与考虑 Dresselhaus 立方项在高温占据主导作用的结果相符。此结果已经提交到 Chinese Physics Letters, 正在审稿中。

三、立方相 GaN 体材料的自旋动力学性质研究。

我们在立方相 GaN 体材料中观察到了 ns 量级的自旋寿命,并且自旋寿命随温度、横向磁场、光激发载流子浓度的依赖关系非常弱。同时我们也研究了不依赖于温度变化的有效 g 因子,其绝对值为: 1.93 ± 0.02 , 这跟文献报道结果是一致的。

关键词: 自旋-轨道耦合, 自旋寿命, 自旋动力学, 半导体

英文摘要

Abstract

In semiconductors, spin-orbit coupling (SOC) is very important and has a significant impact on spin dynamics. We can control spin electrically due to the presence of SOC. In the thesis, we focus on the spin dynamics and manipulation in semiconductors bulk and two dimensional structures. What we studied here are zinc blende GaAs and GaN, in which the D'Yakonov-Perel (DP) mechanism dominates the spin relaxation. Due to the DP mechanism, we can control the spin dynamics by choosing special crystal orientation, band engineering and applying gate voltage. All measurements are done in the ultrafast optical laboratory, and the main technique is the time-resolved Kerr rotation assisted by Photoluminescence spectra, semiconductor nanostructures fabrication, electrical measurement.

The main results can divide into three sections:

1) The anisotropy of spin dynamics in (001)-oriented GaAs/AlGaAs asymmetric quantum wells.

In (001)-oriented quantum wells, the asymmetry is induced by two methods: gradient barrier by alloy variation and one-side modulation-doped.

A distinctive anisotropy of in-plane spin splitting was observed at an external magnetic field in asymmetric quantum well with gradient barrier. The anisotropy comes from a new spin splitting term, which is the combined effect of Dresselhaus SOC plus asymmetric confinement potential. Meanwhile, the spin relaxation is isotropy in this kind asymmetric quantum well, which demonstrates that the gradient barrier induced by alloy composition variation can't induce Rashba spin splitting. *Refer to Nanoscale Research Letters 6, 520(2011).*

In one-side modulation-doped asymmetric quantum well, both spin precession frequency and spin relaxation are anisotropic at low temperature $T < 100\text{K}$. At higher temperature, the anisotropy of spin precession frequency disappeared, which is in

agreement with the results obtained in the asymmetric quantum well with gradient barrier; while the in-plane spin relaxation also becomes isotropy but is slower than the out-of-plane spin relaxation, and it is a result of DP mechanism when the Dresselhaus cubic term is considered.

2) The control of spin dynamics in special (111)-oriented GaAs/AlGaAs quantum wells.

The electric control of spin dynamics is studied in GaAs/AlGaAs quantum wells grown on (111)A or (111)B-oriented substrates. In both cases the spin lifetimes are significantly increased by applying an external electric field but the electric field has to point along the growth direction for structures grown on (111)A and opposite to it for the ones grown on (111)B. This extended electron spin lifetime is the result of the suppression of the DP spin relaxation mechanism due to the cancellation effect of the external electric field induced Rashba term with the internal Dresselhaus one. These results demonstrate the key role played by the growth direction in the design of spintronic devices. *Refer to Applied Physics Letters (submitted).*

The spin dynamics is studied in a pair of asymmetric (111) quantum wells with gradient barrier. The large deviation of spin lifetime is observed at low temperature $T < 100\text{K}$ due to the results of cancellation effect of interface inversion asymmetry (IIA) and Dresselhaus terms. The deviation decreases with increasing temperature, and almost disappears when $T > 100\text{K}$, because of the growing significant of Dresselhaus cubic in k term. *Refer to Chinese Physics Letters (submitted).*

3) Spin dynamics in cubic GaN bulk.

Long spin lifetime (nanoseconds) is observed in cubic GaN bulk. The spin lifetime is weakly depended on temperature, external magnetic field and photo excited carriers. Meanwhile, we extract the effective g factor: 1.93 ± 0.02 . Both the value and the temperature independence of g factor are in agreement with previous reports.

Key words: spin-orbit coupling, spin lifetime, spin dynamics, semiconductor,

目录

半导体中自旋动力学和自旋操控的实验研究	I
中文摘要	I
英文摘要	III
第一章 绪论	1
第二章 半导体自旋电子学简介	6
2.1 引言	6
2.2 自旋极化的产生	7
2.3 自旋的弛豫和退相干	9
2.4 自旋的探测	11
第三章 (001) 取向GaAs/AlGaAs不对称量子阱中自旋动力学的实验研究	21
3.1 (001) 取向量子阱中的电子自旋性质	21
3.1.1 (001) 取向量子阱中自旋寿命的各向异性	22
3.1.2 磁场下面内自旋分裂的各向异性(理论)	25
3.2 (001) 取向不对称量子阱(单边倾斜势垒)的实验研究	27
3.2.1 样品设计和生长	27
3.2.2 实验方法和配置	28
3.2.3 磁场下面内自旋分裂的各向异性(实验数据分析)	29
3.2.4 自旋分裂各向异性的温度依赖关系	32
3.3 (001) 取向单边掺杂不对称量子阱	34
3.3.1 样品结构与实验配置	34
3.3.2 单边掺杂量子阱中自旋性质的各向异性	34
3.3.3 实验中存在的一些问题以及后续工作	36
3.4 本章小结	37
第四章 (111) 取向GaAs/AlGaAs量子阱中自旋动力学的实验研究	42
4.1 (111) 取向量子阱的自旋弛豫机制及其特殊性	42
4.2 量子阱生长方向依赖的电子自旋动力学	45

4.2.1 样品的结构和制备	45
4.2.2 实验配置以及样品的电学、光学性质	46
4.2.3 自旋寿命的电场操控	48
4.2.4 生长方向对自旋动力学的影响	51
4.3 (111) 取向不对称量子阱 (单边倾斜势垒)	52
4.3.1 样品的结构和光谱性质	52
4.3.2 (111) 取向不对称量子阱中的自旋动力学	54
4.3.3 (111) 取向不对称量子阱中的自旋弛豫机制	54
4.4 本章小结	57
第五章 立方相Ga _{0.9} N _{0.1} 自旋动力学的实验研究	62
5.1 立方相 Ga _{0.9} N _{0.1} 的优越性	62
5.2 高纯立方相 Ga _{0.9} N _{0.1} 的光谱性质以及实验配置	63
5.3 立方相Ga _{0.9} N _{0.1} 中ns量级的长自旋寿命	65
5.4 电子有效 g 因子	67
5.5 立方相Ga _{0.9} N _{0.1} 中可能的自旋弛豫机制	67
5.6 本章小结	68
第六章 总结	72
硕博连读期间发表的论文	75
硕博连读期间获得的奖励	77
致谢	79

第一章 绪论

半导体点接触晶体管自被研制成功之后，就被广泛应用到逻辑处理器中。随着集成电路的发明，以电荷为信息载体的传统电子学微电子学蓬勃发展。如今电子器件应用随处可见，剧烈地改变着人们的生活。目前集成电路的集成度越来越高，已经发展出特大规模集成电路和巨大规模集成电路。然而，随着器件尺寸的不断变小进入微观领域，电子的输运过程将出现不可避免的量子效应。传统电子学的发展受到严峻考验，集成电路必须在量子力学的基础上被重新设计。由此，“自旋电子学（spintronics）” [1]的概念应运而生，即利用电子的自旋自由度来取代或结合电荷作为信息载体。

自旋电子学作为一门新兴的交叉学科，涉及低维材料、微电子、磁学、光学、凝聚态物理、量子信息等众多领域。其目的在于有效地操控固体中的自旋自由度，从而最终实现自旋电子器件。自旋电子学时代开始于 1988 年巨磁阻效应（giant magnetoresistance, GMR） [2,3]的发现[4,5,6]。巨磁阻效应借助自旋阀结构（spin valve） [7]很快就被应用到磁硬盘读出头中，并实现产业化，自此硬盘存储器的容量迅速增长，引起计算机存储领域的巨大变革。随后利用自旋阀和磁隧道结（magnetic tunnel junction, MTJ） [8,9]，更多具有优越性能的自旋器件不断被提出和开发，如磁场传感器、电隔离器、磁随机存储器等。这些自旋电子学器件都是基于铁磁材料制造而成，也称磁电子学（Magnetoelectronics）。磁电子学的发展非常成功。然而要开发具有放大功能的自旋器件（如晶体管），并最终能与传统微电子器件结合，实现集逻辑、存储和通讯等多功能为一体的新型电子芯片，还有待研究。半导体材料是实现这类器件和研究自旋电子学最好的材料，因为半导体材料具有优越的光学、电学、能带可控性能，并且半导体工艺技术已经非常成熟，容易制备集成各种器件。

人们很早就开始了对自旋的研究。Wood 和 Ellett 早在 1924 年发现了 Hanle 效应（横向磁场降低荧光的偏振度） [10]；Lampel[11]等人开启了半导体中电子光学自旋取向实验研究的篇章；随后研究半导体自旋动力学的大量理论和实验

工作被完成。“Optical Orientation” [12]一书将之前的工作做了很好的总结。这些实验大多采用连续光激发下的光致荧光光谱技术。更近一些的实验开始采用锁模激光的时间分辨光谱技术。从二十世纪九十年代开始, 半导体自旋电子学引起了研究者们巨大的兴趣, 开始了爆炸式发展。学者们广泛研究了不同条件(温度、磁场)、不同维度(体材料、量子阱、量子线、量子点)、不同材料体系的自旋动力学和输运性质。发现了很多自旋相关的新奇现象, 如自旋霍尔效应 (spin Hall effect) [13~18], 自旋库仑拖拽效应 (spin Coulomb drag effect) [19], 自旋光伏效应 (spin photogalvanic effect) [20,21] 以及持续自旋螺旋效应 (persistent spin helix effect) [22,23] 等。这些工作都非常重要, 给实现半导体自旋电子器件带来了希望, 但仍然还有很多问题需要解决。

在半导体中, 自旋-轨道耦合具有非常重要的地位, 它结合动量弛豫过程对自旋弛豫和退相干过程有深远影响, 不仅如此, 它还为电学控制自旋提供了可能。最早基于自旋进动的 Datta-Das 自旋场效应管就是根据 Rashba 自旋-轨道耦合的电学可控性提出来的[24]。因此我们有必要对自旋-轨道耦合以及它对自旋弛豫的影响做更深入的研究。

在 III-V 族和 II-VI 族半导体材料中, 尤其在相对高温区域, 起主导作用的自旋弛豫机制是 D'Yakonov-Perel (DP) 机制[25]。在这类半导体材料中, 由于缺少反演对称中心, 自旋-轨道耦合会引起导带电子自旋简并态在 $k \neq 0$ 处被解除。导带电子的自旋分裂可以等效为材料中内建的有效磁场, 磁场的大小和方向依赖于电子波矢 $\vec{k}$ 的大小和方向, 自旋绕着有效磁场做拉莫进动。电子动量散射过程导致进动的随机化进而引起自旋的弛豫。在低维材料中, 除了闪锌矿结构体反转不对称性 (bulk inversion asymmetry, BIA) 导致的 Dresselhaus 自旋分裂项[26], 还能利用结构设计或者外加电场等方式引入结构反转不对称性 (structure inversion asymmetry, SIA), 而 SIA 引起 Rashba 自旋分裂项[27]。这两项是 DP 自旋弛豫机制中自旋分裂项的主要来源。通过控制这两项的大小、形式, 以及利用它们的相互作用, 可以做很多非常有意义的工作。如理论上就有研究者提出了非弹道区域的自旋晶体管[28], 这种晶体管的设计基于 Dresselhaus 和 Rashba 自旋-轨道耦合的相互作用。本论文的研究工作以 DP 自

旋弛豫机制为理论指导，使用时间分辨的克尔旋转技术，研究 GaAs、GaN 材料中的自旋动力学以及自旋的操控，意在为半导体自旋电子学的发展做出一点贡献。

本论文的主要工作是研究半导体材料的自旋动力学及其控制。第二章简单介绍半导体自旋电子学的一些基本概念：自旋极化的产生，自旋的弛豫和退相干，以及自旋的探测。从第三章到第五章为硕博期间的主要工作和研究成果，第三章主要内容是 (001) 取向 GaAs/AlGaAs 不对称量子阱电子自旋动力学实验研究。第四章主要内容是 (111) 取向 GaAs/AlGaAs 量子阱中自旋动力学的控制。第五章主要内容是立方相 GaN 体材料中自旋动力学的实验研究。第六章回顾并总结了硕博期间的工作。

参考文献

- [1] D. D. Awschalom and J. M. Kikkawa, *Phys. Today*, **1999**, 6, 33.
- [2] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Greuzet, A. Friederich and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.*, **1988**, 61, 2472.
- [3] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach and W. Zinn, *Phys. Rev. B*, **1989**, 39, 4828.
- [4] Gary A. Prinz, *Science*, **1998**, 38, 114.
- [5] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova and D. M. Treger, *Science*, **2001**, 294, 1488.
- [6] J. Barnás, A. Fuss, R. E. Camley, P. Grünberg and W. Zinn, *Phys. Rev. B*, **1990**, 42, 8110.
- [7] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit and D. Mauri, *Phys. Rev. B*, **1991**, 43, 1297.
- [8] J. S. Moodera, Lisa R. Kinder, Terrilyn M. Wong and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.*, **1995**, 74, 3273.
- [9] T. Miyazaki and N. Tezuka, *J. Magn. Magn. Mater.*, **1995**, 151, 403.
- [10] R. W. Wood, A. Ellett, *Phys. Rev.*, **1924**, 24, 243.
- [11] G. Lampel, *Phys. Rev. Lett.*, **1968**, 20, 491.
- [12] F. Meier, B. P. Zakharchenya (E.D.), *Optical Orientation*, (North-Holland, Amsterdam, 1984).
- [13] M. I. D'yakonov, V. I. Perel', *JETP Lett.*, **1971**, 13, 467; *Phys. Lett. A*, **1971**, 35, 459.
- [14] J. E. Hirsch, *Phys. Rev. Lett.*, **1999**, 83, 1834.
- [15] S. Zhang, *Phys. Rev. Lett.*, **2000**, 85, 393.
- [16] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard and D. D. Awschalom, *Science*, **2004**, 442, 176.
- [17] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova and T. Jungwirth, *Phys. Rev. Lett.*, **2005**,

- 94, 047204.
- [18]S. O. Valenzuela and M. Tinkham, *Nature*, **2006**, 442, 176.
- [19]C. P. Weber, N. Gedik, J. E. Moore, J. Orenstein and D. D. Awschalom, *Nature*, **2005**, 437, 1330.
- [20]S. D. Ganichev, E. L. Ivchenko, V. V. Bel'kov, S. A. Tarasenko, M. Sollinger, D. Weiss, W. Wegscheider and W. Prettl, *Nature*, **2002**, 417, 153.
- [21]S. D. Ganichev, H. Ketterl, W. Prettl, E. L. Ivchenko and L. E. Vorobjev, *Appl. Phys. Lett.*, **2000**, 77, 3146.
- [22]B. A. Bernevig, J. Orenstein and S.-C. Zhang, *Phys. Rev. Lett.*, **2006**, 97, 236601.
- [23]J. D. Koralek, C. P. Weber, J. Orenstein, B. A. Bernevig, S.-C. Zhang, S. Mack and D. D. Awschalom, *Nature*, **2009**, 458, 610.
- [24]S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.*, **1990**, 56, 665.
- [25]M. I. D'yakonov and V. Yu. Kachorovskii, *Sov. Phys. Semicond.*, **1986**, 20, 110.
- [26]G. Dresselhaus, *Phys. Rev.*, **1955**, 100, 580.
- [27]Y. A. Bychkov and E. I. Rashba, *J. Phys. C*, **1984**, 17, 6039.
- [28]J. Schliemann, J. C. Egues and D. Loss, *Phys. Rev. Lett.*, **2003**, 90, 146801.

第二章 半导体自旋电子学简介

2.1 引言

半导体自旋电子学是自旋电子学最主要的一个分支，可以分为两个领域[1]：半导体磁电子学和半导体量子电子学。半导体磁电子学研究材料体系是稀磁半导体和铁磁半导体，主要目的是结合半导体材料和磁性材料各自的优势开发新功能的自旋电子器件，如光隔离器、磁传感器、非易失性存储器，并将这些器件集成到半导体器件和电路中形成多功能芯片。稀磁半导体是指半导体中的部分原子被磁性杂质（过渡金属元素）取代后形成的磁性半导体，由于掺入的磁性粒子浓度一般很低，其磁性比较弱，介于磁性和非磁性材料之间，因此叫做稀磁半导体（diluted magnetic semiconductors, DMS）或者半磁性半导体（semimagnetic semiconductors, SMSC）。目前研究比较透彻的是以锰（Mn）作为磁性杂质的II-V和III-IV族稀磁半导体。半导体量子电子学则是研究非磁性半导体材料中的自旋特性，意在利用半导体中自旋的量子特性来实现量子信息处理等过程。非磁性半导体中，自旋具有相对较长的相干时间，并且可以被光学和电学方法调控，目前研究的比较多的是GaAs等III-IV族以及Si等被广泛应用的传统半导体材料。在过去的二、三十年里，半导体自旋电子学发展非常迅速。研究内容包括自旋极化的产生、注入，自旋的相干输运、隧穿，自旋的弛豫和退相干，自旋的有效探测，这些内容是为实现自旋电子器件必须深入研究的。图2.1为Awschalom和Flatté[2]在2007年总结1994年到2006年期间，这个领域主要的实验发现。这些研究成果预示着半导体自旋电子器件的实现是可能的。理论上也提出了很多自旋电子器件的模型，然而这些器件都还未真正实现，还有很多问题和挑战。我们的工作主要集中在闪锌矿GaAs、GaN及其二维结构中，为了更清楚地了解这些半导体中的自旋动力学过程，我们先介绍半导体自旋电子学中的一些基本概念。关于半导体自旋电子更详细的理论和进展可以参考一些综述性的书籍和文献[3~7]。

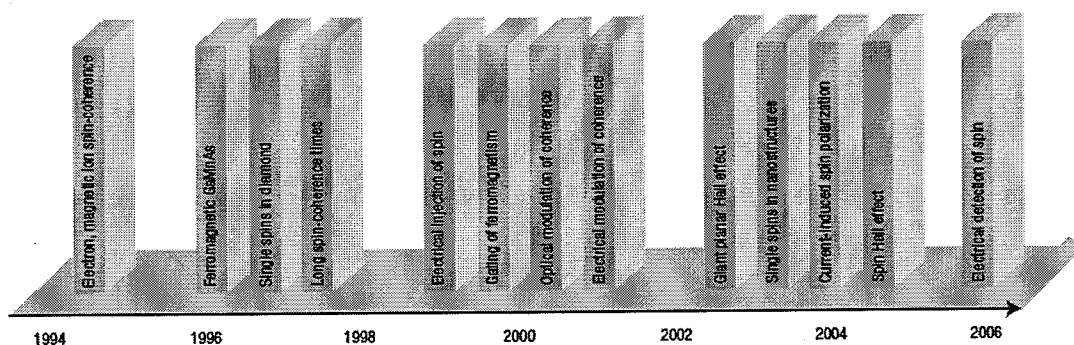


图 2.1 1994~2006 年半导体自旋电子学领域主要的实验发现。

2.2 自旋极化的产生

简单有效地在半导体中产生自旋极化对于半导体自旋电子学研究非常重要。实现自旋极化通常有磁学、电学和光学方法可以使用。这里简单介绍其中的几种。

最直接的方法是通过外加磁场产生自旋分裂，从而在样品中产生沿磁场方向的自旋极化。不过通常情况下这个方法不太适用，因为一般半导体材料中有效 g 因子太小，只有在很大的磁场下才能产生有效的自旋极化。

利用铁磁金属(ferromagnetic metal, FM)-半导体的接触，将铁磁金属中天然自旋极化的电流[8]引入半导体材料是一种可行的方法。这种形式又可以分为欧姆注入和隧道注入。欧姆注入是将铁磁金属作为电极，与半导体形成欧姆接触，然后通以电流将铁磁金属中的自旋极化电流注入到半导体中。但欧姆注入的自旋极化率很低， $T < 10\text{K}$ 时，由 FM-InAs 可以实现 4.5% 的自旋极化注入[9]；室温时，由 Fe-GaAs 可以实现 2% 的自旋极化注入[10]。这是由于为实现金属-半导体间的欧姆接触，半导体表面通常需要进行重掺杂，这会导致电子在通过金属-半导体界面时发生自旋反转的散射[11]，损失自旋极化。研究发现隧穿是比扩散输运更有效的自旋注入方法。在具有高磁阻的 FM-绝缘体-FM 隧道结中，已经证实隧穿势垒能够保持隧穿过程的自旋极化。用扫描隧道显微镜的铁磁针尖可以通过一个真空隧穿过程将自旋极化电子有效地注入到半导体中[12]。

借助自旋霍尔效应[13~18]，可以用电学方法在半导体内部产生自旋极化。自旋霍尔效应是一种在垂直电流方向的样品边界产生自旋积累的效应，这是由

于自旋轨-道耦合的存在会产生自旋偏转的散射，导致在样品两边积累自旋极化相反的电子，但维持电荷流为零。Kato 等人[18]，在 n 型 GaAs 中，利用克尔效应观测到，垂直于电流的样品边缘出现自旋极化，图 2.2 为他们测得的自旋浓度的二维分布。利用自旋霍尔效应产生自旋极化的优点是不需要磁场，因此可以实现全电学操控的半导体自旋电子器件。

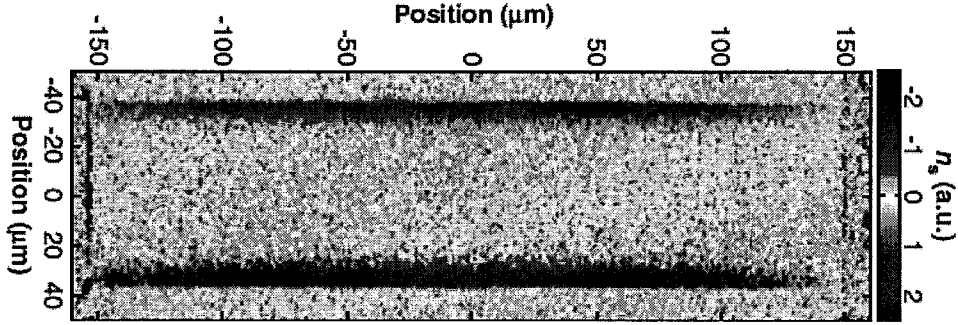


图 2.2 自旋浓度的二维分布，T=30K。

光学方法产生自旋极化在研究半导体自旋弛豫实验中被广泛采用[18~26]，它的理论基础是半导体光吸收的跃迁选择定则。由于特定的能带结构，不同自旋取向的电子只能被特定的圆偏振光所激发。图 2.3 左边为 GaAs 材料的能带示意图，右边为光学跃迁选择定则的示意图[3]，其中圆圈中的数字代表相对的跃迁强度。对于 GaAs 体材料，价带轻重空穴是简并的。如果用一束右旋光 σ^+ 垂直入射样品表面，只能将价带-3/2 (-1/2) 的电子激发到导带-1/2(1/2)的电子态上；当激发光的能量在 E_g 和 $E_g + \Delta_{SO}$ 之间时，由于轻重空穴的跃迁几率不同，

理论上会产生 50% 的自旋极化率： $P_n = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_-} = \frac{1-3}{1+3} = -\frac{1}{2}$ 。这里要说明的一点

是，当不存在自旋-轨道耦合或激发光能量大于 $E_g + \Delta_{SO}$ 时，将不会产生自旋极化。如果是量子阱结构，由于量子阱限制作用，轻重空穴能量是分离的，选择适当的激发能量，激发电子的自旋极化率将被大大地提高[22,25,26]，理论上可以产生 100% 的自旋极化率。光学方法产生自旋极化相对比较容易，而且能够产生很高的自旋极化率，对于研究自旋动力学是比较好的方法。本篇论文的工作采用也采用这种方法。

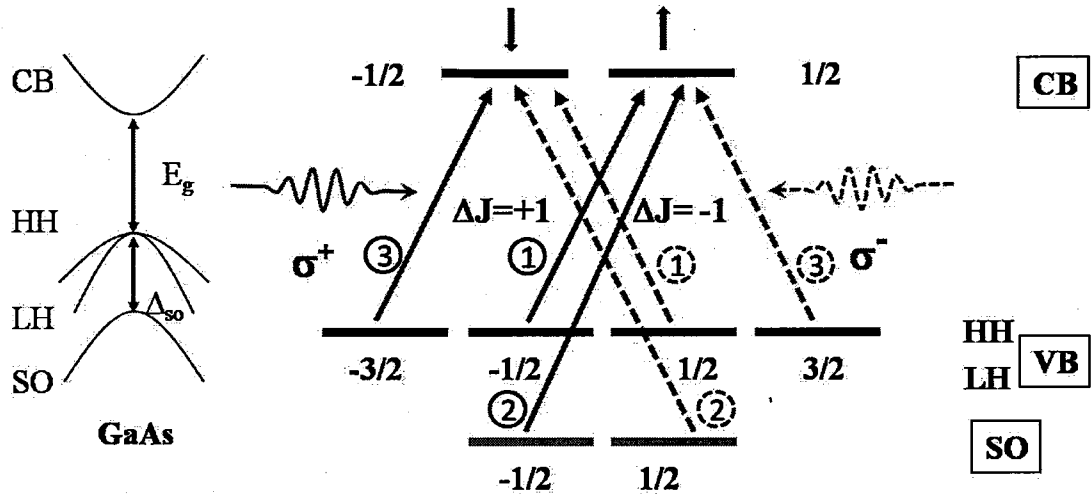


图 2.3 左边为 GaAs 量子阱能带示意图，右边为光学跃迁选择定则示意图，圆圈中的数字代表相对的跃迁强度。

2.3 自旋的弛豫和退相干

自旋的弛豫 (spin relaxation) 和退相干 (spin dephasing) 过程是自旋达到平衡态的过程，这对实现自旋电子器件尤其重要。要想利用自旋进行信息编码和传递必须要求非平衡的电子自旋能够维持足够长的时间，以保证完成这些操作。自旋的弛豫和退相干，通常使用自旋弛豫时间 T_1 (或叫纵向弛豫时间) 和自旋退相干时间 T_2 (或叫横向弛豫时间) 来描述。它们是通过外磁场下自旋进动的 Bloch 方程[27,28]定义的。当系统处于磁场中，电子的磁矩将围绕磁场进行拉莫进动。由于各种耗散机制，进动会不断减弱，平行于磁场方向 (纵向) 的磁矩将趋向于一个平衡值，垂直磁场方向 (横向) 的分量将趋向于衰减为零。其纵向分量与系统的能量相关，达到自旋热平衡过程必然与晶格发生能量交换，所以纵向弛豫时间 T_1 通常也叫自旋晶格弛豫时间。而横向弛豫时间 T_2 反应的是自旋横向分量在绕着磁场进动的过程中，由于进动频率空间和时间上的涨落造成的相位丢失。通常情况下 T_1 比 T_2 要长得多[7]。

在半导体材料中，主要有四种自旋弛豫机制：Elliott-Yafet(EY)机制，D'yakonov-Perel'(DP)机制，Bir-Aronov-Pikus(BAP)机制，超精细相互作用机制 (Hyperfine-interaction mechanism)。这些弛豫机制可能同时起作用，也可能某种机制起主导作用，这受半导体材料的结构以及载流子、杂质浓度，量子限制、

温度、磁场、应变、电场等各种因素影响。下面我们对这四种自旋弛豫机制逐个进行简单的介绍。

EY 机制[29, 30]: 如果晶体中存在自旋-轨道耦合相互作用, 单电子的波函数不再是本征态, 而是自旋向上和自旋向下的混合态。那么随机的动量散射过程将会导致自旋存在一定的翻转几率, 从而引起自旋的弛豫过程。自旋翻转的动量散射过程通常可以由杂质和声子引起, 还可以由边界、电子-空穴、电子-电子散射引起。EY 机制最显著的特征是自旋的弛豫时间正比于动量弛豫时间: $\tau_s \sim \tau_p$ 。EY 机制一般在缺陷或杂质浓度比较高的情况下会占据主导作用。对于 III-V 族半导体, EY 机制在具有强自旋-轨道耦合的窄禁带半导体中比较重要 [3, 22, 31]。

BAP 机制[32~34]: 这种机制来源于电子-空穴间的交换相互作用, 在 p 型半导体中比较重要, 自旋弛豫速率正比于空穴浓度。一般只在重掺杂半导体以及低温环境下才占主要作用。

DP 机制[35, 36]: 在 GaAs 这类半导体材料中, 由于其没有反转对称中心, 导带电子由于自旋-轨道耦合作用是自旋分裂的。而由反转不对称性造成的自旋分裂项可以描写成[3, 5, 37]

$$H(\vec{k}) = \hbar \vec{\Omega}(\vec{k}) \cdot \vec{S} \quad (2.1)$$

这相当于自旋在一个有效磁场 $\vec{\Omega}(\vec{k})$ 中的能量, 有效磁场的大小和方向依赖于电子波矢 $\vec{k}$ 。在电子两次碰撞间隔 (即动量弛豫时间 τ_p) 内, 自旋将绕着这个有效磁场做拉莫进动, 当自旋转过角度 $\Omega \tau_p$ 时, 电子发生碰撞, 电子动量改变方向, 自旋将绕着新的有效磁场进动, 由于动量散射过程是随机的, 每一个过程中自旋都将损失一定角度。与 EY 过程不同的是, DP 过程自旋的转动发生在两次碰撞之间, 因此动量散射越强 (动量弛豫时间 τ_p 越短) 自旋弛豫速率就越慢:

$\frac{1}{\tau_s} \sim \Omega^2 \tau_p$ 。DP 机制下导带自旋分裂主要有两个来源: 由材料体反转不对称性

(Bulk Inversion Asymmetry, BIA) 引起 Dresselhaus 项[37], 和由结构反转不对

称性(Structure Inversion Asymmetry, SIA)引起的 Rashba 项[38]。在体材料中, Dresselhaus 项依赖于 $\vec{k}$ 的立方项;在量子阱或异质结中,由于量子限制效应, k_z 是量子化的, Dresselhaus 项分成为两项: $\vec{k}$ 的线性项和立方项,通常认为立方项比较弱,可以忽略不计。Rashba 项依赖于 $\vec{k}$ 的线性项。在 III-V 和 II-VI 族半导体体材料和二维结构中,通常 DP 机制占主导地位,尤其是在高温区域[3, 39, 40]。由于 Rashba 和 Dresselhaus 项的相互作用会产生很多有趣的自旋现象,例如 (001) 量子阱面内自旋弛豫的各向异性[41,42]。利用 DP 自旋弛豫机制控制半导体中自旋动力学过程一直是学者们研究的热门。我们的研究工作主要也是基于 DP 机制。

超精细相互作用[43,44]: 超精细相互作用是电子和原子核自旋之间的相互作用,对于局域电子(可以是被限制在量子点中,或束缚在施主(donors)中心)自旋的弛豫过程非常重要[43],其哈密顿量取决于费米接触相互作用[3, 5, 45]:

$$H = \sum_n a_n (s \cdot I_n) \quad (2.2)$$

其中 $a_n = \nu_0 A_n |\phi(\vec{r}_n)|^2$, ν_0 为单位元包体积, $\phi(\vec{r}_n)$ 为第 n 个原子核位置处电子的波函数, I_n 原子核自旋算符, A_n 超精细常数。这就好像电子自旋处于一个晶格原子核自旋极化产生的磁场中。由于超精细相互作用的存在,电子的自旋(或角动量)可以传递给晶格原子核,因此利用圆偏振光照射半导体可以产生原子核自旋的极化[22, 46],这个过程被称为动态核极化。电子-原子核系统的研究由来已久,1984 年出版的 Optical Orientation 一书[22]对此前的工作做了相对完整的总结。2005 年 Braun 等人[47]在 p 型 InGaAs/GaAs 量子点中,利用时间分辨光谱实验很好地证明了,由于核自旋作用导致的自旋弛豫过程。

2.4 自旋的探测

实验上,自旋的探测主要采用的是电学和光学方法。对于通过磁性材料与半导体接触方式注入自旋,可以通过测量磁阻变化来观测自旋极化状态,这在

磁电子学领域被广泛应用。在半导体自旋电子学领域，光学方法检测自旋极化状态的方法使用范围比较广，也相对比较容易实现。我们这里主要介绍光学方法。

早期的光学测量，大多是测量连续光激发的光致发光（Photoluminescence, PL）光谱来获得相应的自旋信息，Optical Orientation 一书[22]对此做了相对完整的总结。如 2.2 节自旋极化的产生所描述，使用圆偏振光激发半导体样品，由于光学跃迁选择定则会使某种自旋取向的电子被激发的几率更大，从而产生导带电子的自旋极化。同样的被激发的导带电子，经过一段时间后与空穴发生复合，发射出荧光，由于选择定则，荧光的圆偏振度与光激发载流子的自旋极化度直接相关。如果被激发的电子和空穴对，没有经历弛豫过程，立即复合，将产生 100% 的圆偏振光子。然而通常空穴的自旋弛豫过程要比电子自旋弛豫快得多[22,48,49]，当电子与空穴复合时，空穴并不是自旋极化的。这样一来根据光学跃迁选择定则（见图 2.3）可以得出荧光的圆偏振度为：

$$P_0 = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} = \frac{(n_+ + 3n_-) - (3n_+ + n_-)}{(n_+ + 3n_-) + (3n_+ + n_-)} = -\frac{P_n}{2} = \frac{1}{4}。这里没有考虑电子自旋弛豫，一般$$

来说，荧光的圆偏振度要小于 P_0 ：

$$P = \frac{P_0}{1 + \tau_r / \tau_s} \quad (2.3)$$

其中 τ_r 为辐射复合时间， τ_s 为自旋弛豫时间。我们可以看到荧光的偏振度取决于复合时间和自旋弛豫时间的比值： τ_r / τ_s 。因此通过测量荧光的偏振度和辐射复合时间，就能计算出自旋弛豫时间。

Hanle 效应[22,50]是荧光偏振度在横向磁场下减小的效应，可以用来研究自旋动力学。在横向（即垂直于激发光方向）施加一个磁场，自旋将绕着这个磁场做拉莫（Larmor）进动。此时系统将建立起新的动态平衡过程，当系统稳定后自旋极化在 z 方向的分量取决于初始极化率、复合时间、弛豫时间还有拉

莫频率。最终测量的荧光偏振度将受磁场影响而减小：

$$P(B) = \frac{P_0(0)}{1 + (\Omega_L T_s)^2} \quad (2.4)$$

其中 $\Omega_L = g\mu_B B$ 为自旋绕着磁场做拉莫进动的频率， T_s 为自旋寿命：

$$\frac{1}{T_s} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_s}.$$

实验上获得荧光偏振度对磁场的洛伦兹曲线，根据曲线的半宽高，

可以给出有效 g 因子与自旋寿命之间的关系，知道其中任意一个就能知道另外一个。此方法是研究自旋动力学很有效的手段，现在在很多情况下依然被采用[51]。

光学取向实验对研究自旋动力学过程虽然很有效，但只能间接得到自旋的信息，并不能实时观测自旋弛豫的过程。随着锁模激光技术的发展成熟，时间分辨光谱技术开始被广泛采用。利用脉冲激光瞬时激发产生自旋极化，然后利用一些手段探测不同延迟时间的光谱信息，就可以直接测量光生载流子自旋极化的弛豫过程。时间分辨光谱又叫超快光谱或瞬态光谱，测量手段有很多，实验上常用的有：时间分辨光致荧光光谱（Time-resolved Photoluminescence, TRPL）和时间分辨克尔/法拉第旋转光谱（Time-resolved Kerr/Faraday Rotation, TRKR/FR）以及瞬态自旋光栅光谱（Transient Spin Grating）。

荧光在激发光撤除后不会马上消失，而是慢慢衰减至零。如果激发光是脉冲激光，那么在激发脉冲后不同的延迟时间记录荧光强度，就能研究光激发载流子的动力学过程。如果激发光是圆偏振的，也就是激发电子是自旋极化的，那么分别记录右旋偏振（ σ^+ ）的荧光强度 I_{σ^+} 和左旋偏振（ σ^- ）的荧光强度 I_{σ^-} 随时间的衰退过程，利用圆偏振度：

$$\rho = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}} \quad (2.5)$$

可以得到荧光圆偏振度随时间的演化过程。根据光学取向的知识，荧光偏振度是直接反应自旋极化度，因此我们利用时间分辨的光致荧光技术就可以研究光激发载流子的辐射复合过程以及载流子自旋弛豫过程[52]。

时间分辨克尔/法拉第旋转 (TRKR/FR) 光谱是一种泵浦-探测方法, 首先用一束脉冲光激发样品, 然后用一束时间延迟的探测脉冲光测量样品对激发光的响应, 探测光功率与泵浦光相比需要非常弱, 可以忽略其对样品的影响。其基本原理是磁光克尔/法拉第(Kerr/Faraday)效应[53], 即当一束线偏振光入射到磁性介质后, 其反射光/透射光的偏振性质(偏振面和椭圆率)会发生变化。对于反射情形, 称为克尔效应; 对于透射情形, 称为法拉第效应。偏振面旋转的角度称为克尔旋转角(或法拉第旋转角), 旋转角的大小正比于介质磁矩的大小, 对应自旋极化来说, 正比于自旋极化强度。通过记录克尔旋转角/法拉第旋转角随时间的演化过程, 就可以得到自旋极化随时间的演化过程。利用时间分辨克尔/法拉第效应研究半导体自旋动力学, 使用的典型光子能量, 在光致发光光谱(Photoluminescence, PL)略偏高能端, 在光致发光激发谱(Photoluminescence excitation, PLE)上升沿处, 如图 2.4 中 pump-probe 箭头标出位置[54]。不过对于克尔效应来说, 在考虑了样品多层膜反射引起的干涉效应, 克尔共振峰位置会发生微小的偏移[55]。时间分辨克尔/法拉第旋转光谱技术是研究自旋电子学非常强有力的实验手段[23,54~57], 加之目前进一步发展的双色瞬态克尔/法拉第旋转光谱(Two-color transient Kerr/Faraday rotation) [58~60]以及空间(spatially-)和时间(time-)分辨的克尔/法拉第旋转光谱[61,62], 使得这一技术更加强大。

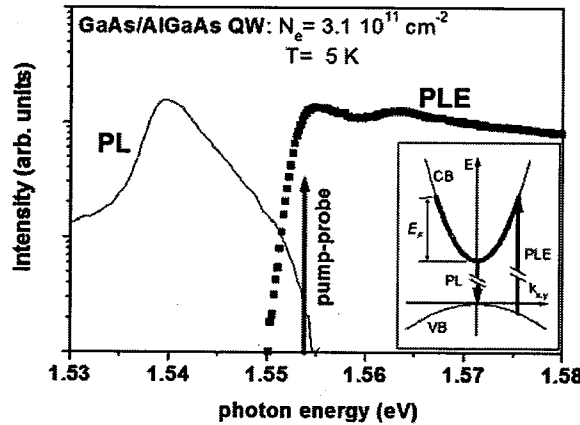


图 2.4 测量时间分辨克尔/法拉第效应使用的典型光子能量。

瞬态自旋光栅 (Transient Spin Grating) 技术来源于四波混频, 是一种衍射光谱。瞬态自旋光栅的强大之处在于能直接测量自旋扩散系数, 对研究自旋输运是非常强有力的实验手段[63~68], 最早由 Miller 等人提出[64]。其基本原理

是利用线偏振方向垂直的两束相干光作为泵浦光在样品表面产生位相干涉，如图 2.5 (a) [64]所示，光的偏振特性在空间上是周期性调制的：从左旋到线偏振到右旋再到垂直方向的线偏振。对应的，由于光学跃迁选择定则，在半导体样品中激发的电子自旋极化浓度也是空间调制的（如图 2.5 (b)），形成我们所说的自旋光栅，而当泵浦光是脉冲光，这个自旋光栅是瞬态的。再以一束时间延迟的线偏振光入射到瞬态光栅上探测衍射光信号，就能实时记录光栅的演化过程。瞬态自旋光栅的衰减速率为：

$$\Gamma_s = D_s q^2 + \frac{1}{\tau_s} \quad (2.6)$$

其中 D_s 为自旋扩散常数， q 为瞬态光栅波矢， τ_s 为自旋弛豫时间。通过改变 q 值可以得到不同 q 值下的光栅弛豫速率 Γ_s ， Γ_s 随 q^2 线性关系的斜率给出自旋扩散常数。通常情况下，用一束探测光直接探测，信号非常小并且信噪比很差，因此常用的是外差法探测[67,69]。利用外差法可以有效地放大信号（能放大 4~5 个数量级[67]），提高信噪比。瞬态浓度光栅也是瞬态光栅，它与瞬态自旋光栅的区别在于形成的空间周期排布的是载流子浓度，产生原理是光干涉引起的光场强度空间调制，可以用来研究半导体的双极扩散系数[64,70]。瞬态光栅技术经 Cundiff 等人[71~73]的发展改进已经成为非常强大的二维傅里叶转换光谱技术。

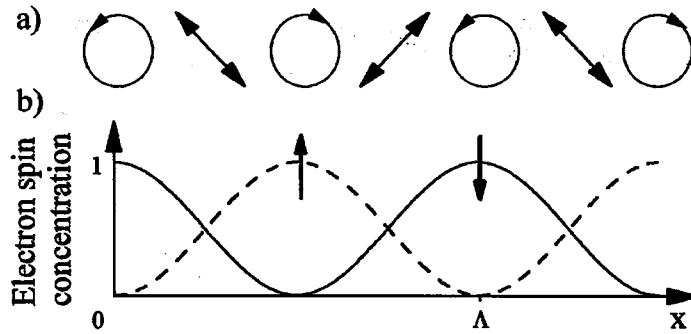


图 2.5 瞬态自旋光栅产生原理图；a) 泵浦光偏振态的空间调制，b) 自旋浓度的空间调制。

参考文献

- [1] H. Ohno, F. Matsukura and Y. Ohno, *JSAP International*, **2002**, 5, 4.
- [2] D. D. Awschalom and M. E. Flatté, *Nature Physics*, **2007**, 3, 153.
- [3] I. Žutić, J. Fabian and S. D. Sarma, *Rev. Mod. Phys.* **2004**, 76, 323.
- [4] J. Fabian, A. Matos-Abiague, C. Ertler, P. Stano, I. Žutić, *Acta Physica Slovaca*, **2007**, 57, 565.
- [5] M. I. Dyakonov(E.D.), *Spin Physics in Semiconductors* (Springer-Verlag Berlin **2008**).
- [6] M. W. Wu, J. H. Jiang and M. Q. Weng, *Physics Reports*, **2010**, 493, 61.
- [7] 夏建白, 葛惟昆, 常凯 (著), 《半导体自旋电子学》科学出版社 **2008** 年 10 月第一版。
- [8] N. F. Mott, *Proc. R. Soc. A*, **1936**, 153, 699.
- [9] C. M. Hu, J. Nitta, A. Jensen, J. B. Hansen and H. Takayanagi, *Phys. Rev. B*, **2001**, 63, 125333.
- [10] H. J. Zhu, M. Ramsteiner, H. Kostial, M. Wassermeier, H. P. Schönherr and K. H. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **2001**, 87, 016601.
- [11] T. Valet, and A. Fert, *Phys. Rev. B* **1993**, 48, 7099.
- [12] S. F. Alvarado, P. Renaud, *Phys. Rev. Lett.* **1992**, 68, 1387.
- [13] J. E. Hirsch, *Phys. Rev. Lett.* **1999**, 83, 1834.
- [14] M. I. D'yakonov and V. I. Perel', *JETP Lett.* **1971**, 13, 467.
- [15] V. Sih, Y. Kato and D. D. Awschalom (E. D.), *Feature: Spin Hall effect*(Physics Word, **2005**, 18, 33)
- [16] J. Sinova, D. Culcer, Q. Niu, N. A. Sinitsyn, T. Jungwirth and A. H. MacDonald, *Phys. Rev. Lett.* **2004**, 92, 126603.
- [17] S. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **2000**, 85, 393.
- [18] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, D. D. Awschalom, *Science*, **2004**, 306, 1910.

- [19]R. R. Parsons, *Phys. Rev. Lett.* **1969**, 23, 1152.
- [20]A. I. Ekimov, V. I. Safarov, *JETP Lett.* **1970**, 12, 198.
- [21]D. Z. Garbuzov, A. I. Ekimov, V. I. Safarov, *JETP Lett.* **1971**, 13, 36.
- [22]F. Meier, B. P. Zakharchenya(E. D.), *Optical Orientation*, (North-Holland, Amsterdam, 1984).
- [23]J. M. Kikkawa, I. P. Smorchkova, N. Samarth, D. D. Awschalom, *Science*, **1997**, 277, 1284.
- [24]Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi, F. Matsukura and H. Ohno, *Phys. Rev. Lett.* **1999**, 83, 4196.
- [25]A. M. Vasilev, F. Daiminger, J. Straka, A. Forchel, V. P. Kochereshko, G. L. Sandler and I. N. Uraltsev, *Superlattices Microstruct.* **1993**, 13, 97.
- [26]B. D. Oskotskij, A. V. Subashiev and Y. A. Mamaev, *Phys. Low-Dimens. Semicond. Struct.* **1997**, 1-2, 77.
- [27]F. Bloch, *Phys. Rev.* **1946**, 70, 460.
- [28]H. C. Torrey, *Phys. Rev.* **1956**, 104, 563.
- [29]R. J. Elliott, *Phys. Rev.* **1954**, 96, 266.
- [30]Y. Yafet, in *Solid State Physics, Vol. 14*, edited by F. Seitz and D. Turnbull (Academic, New York, **1963**).
- [31]J.-N. Chazalviel, *Phys. Rev. B* **1975**, 11, 1555.
- [32]G. L. Bir, A. G. Aronov and G. E. Pikus, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **1975**, 69, 1382[Sov. *Phys. JETP* **1976**, 42, 705]
- [33]M. Z. Maialle, *Phys. Rev. B* **1996**, 54, 1967.
- [34]M. Z. Maialle and M. H. Degani, *Phys. Rev. B* **1997**, 55, 13771.
- [35]M. I. D'yakonov and V. I. Perel', *Fiz. Tverd. Tela* **1971**, 13, 3581[Sov. *Phys. Solid State* **1971**, 13, 3023]
- [36]M. I. D'yakonov and V. I. Perel', *Sov. Phys. JETP* **1971**, 33, 1053.
- [37]G. Dresselhaus, *Phys. Rev.* **1955**, 100, 580.
- [38]Y. A. Bychkov and E. I. Rashba, *J. Phys. C* **1984**, 17, 6039.

- [39]J. M. Kikkawa and D. D. Awschalom, *Phys. Rev. Lett.*, **1998**, 80, 4313.
- [40]Pil Hun Song and K. W. Kim, *Phys. Rev. B*, **2002**, 66, 035207.
- [41]N. S. Averkiev and L. E. Golub, *Phys. Rev. B* **1999**, 60, 15582.
- [42]N. S. Averkiev, L. E. Golub and M. Willander, *Semiconductor*, **2002**, 36, 97.
- [43]M. I. D'yakonov and V. I. Perel', *Sov. Phys. JETP* **1973**, 38, 177.
- [44]N. Bloembergen, *Physica* **1954**, 20, 1130.
- [45]A. Abragam, *Principles of Magnetic Resonance*, (Clarendon Press, Oxford, **1961**).
- [46]G. Lampel, *Phys. Rev. Lett.*, **1968**, 20, 491.
- [47]P. -F. Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, T. Amand, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin, O. Krebs, P. Voisin and Y. Masumoto, *Phys. Rev. Lett.*, **2005**, 94, 116601.
- [48]A. N. Titkov, V. I. Safarov, G. Lampel, in *Proc. ICPS 14*, Edinburgh(**1978**), p. 1031.
- [49]A. E. Ruckenstein, S. Schmitt-Rink, R. C. Miller, *Phys. Rev. Lett.*, **1986**, 56, 504.
- [50]M. J. Snelling, G. P. Flinn, A. S. Plaut, R. T. Harley, A. C. Tropper, R. Eccleston, C. C. Phillips, *Phys. Rev. B* **1991**, 44, 11345.
- [51]N. S. Averkiev, L. E. Golub, A. S. Gurevich, V. P. Evtikhiev, V. P. Kochereshko, A. V. Platonov, A. S. Shkolnik and Yu. P. Efimov, *Phys. Rev. B* **2006**, 74, 033305.
- [52]A. Balocchi, Q. H. Duong, P. Renucci, B. L. Liu, C. Fontaine, T. Amand, D. Lagarde and X. Marie, *Phys. Rev. Lett.*, **2011**, 107, 136604.
- [53]D. D. Awschalom, N. Samarth, Optical manipulation , transport and storage of spin coherence in semiconductors, in *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, ed. by D. D. Awschalom et al.(Springer, Berlin, **2002**), Chap.5.
- [54]W. J. H. Leyland, G. H. John, R. T. Harley, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, D. A. Ritchie, I. Farrer, A. J. Shields, M. Henini, *Phys. Rev. B* **2007**, 75, 165309.

- [55]Z. Chen, R. Bratschitsch and S. T. Cundiff, *Optics Letters*, **2005**, 30, 2320.
- [56]H. M. Zhao, L. Lombez, B. L. Liu, B. Q. Sun, Q. K. Xue, D. M. Chen and X. Marie, *Appl. Phys. Lett.* **2009**, 95, 041911.
- [57]B. L. Liu, H. M. Zhao, J. Wang, L. S. Liu, W. X. Wang and D. M. Chen, *Appl. Phys. Lett.* **2007**, 90, 112111.
- [58]H. Hoffmann, G. V. Astakhov, T. Kiessling, W. Ossau, G. Karczewski, T. Wojtowicz, J. Kossut and L. W. Molenkamp, *Phys. Rev. B* **2006**, 74, 073407.
- [59]Z. Chen, R. Bratschitsch, S. G. Carter, S. T. Cundiff, D. R. Yakovlev, G. Karczewski, T. Wojtowicz and J. Kossut, *Phys. Rev. B* **2007**, 75, 115320.
- [60]Z. Chen, S. G. Carter, R. Bratschitsch, S. T. Cundiff, *Physica E* **2010**, 42, 1803.
- [61]J. M. Kikkawa and D. D. Awschalom, *Nature* **1999**, 397, 139.
- [62]Y. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard and D. D. Awschalom, *Nature* **2004**, 427, 50.
- [63]C. P. Weber, N. Gedik, J. E. Moore, J. Orenstein, J. Stephens, D. D. Awschalom, *Nature* **2005**, 437, 1330.
- [64]A. R. Cameron, P. Riblet, A. Miller, *Phys. Rev. Lett.* **1996**, 76, 4793.
- [65]S. G. Carter, Z. Chen, T. Cundiff, *Phys. Rev. Lett.* **2006**, 97, 136602.
- [66]P. S. Eldridge, W. J. H. Leyland, P. G. Lagoudakis, O. Z. Kaarimov, M. Henini, D. Taylor, R. T. Phillips, R. T. Harley, *Phys. Rev. B* **2008**, 77, 125344.
- [67]胡长城, 王刚, 叶慧琪, 刘宝利, *物理学报(Acta Phys. Sin.)*, **2010**, 59, 0597.
- [68]C. C. Hu, H. Q. Ye, G. Wang, H. T. Tian, W. X. Wang, W. Q. Wang, B. L. Liu and X. Marie, *Nanoscale Research Letters*, **2011**, 6, 149.
- [69]H. J. Eichler, P. Günter, D. W. Pohl, *Laser-Induced Dynamic Gratings*, (Springer-Verlag, Berlin, **1986**).
- [70]胡长城, 叶慧琪, 王刚, 刘宝利, *物理学报(Acta Phys. Sin.)*, **2011**, 60, 017803.
- [71]A. D. Bristow, D. Karauskaj, X. Dai and S. T. Cundiff, *Optics Express*, **2008**, 16, 18017.
- [72]A. D. Bristow, D. Karauskaj, X. Dai, T. Zhang, C. Carlsson, K. R. Hagen, R.

Jimenez and S. T. Cundiff, *Rev. Scien. Instr.* **2009**, 80, 073108.

[73] K. W. Stone, K. Gundogdu, D. B. Turner, X. Li, S. T. Cundiff and K. A. Nelson,
Science, **2009**, 324, 1169.

第三章 (001) 取向 GaAs/AlGaAs 不对称量子阱中自旋动力学的实验研究

3.1 (001) 取向量子阱中的电子自旋性质

通常情况下, GaAs/AlGaAs 量子阱生长在[001]晶向的衬底上。基于这个晶向的半导体生长工艺已经非常成熟, 可以很方便地获得各种结构的高质量样品用于研究工作。许多自旋电子学的工作都在(001)取向半导体结构中进行。在 III-V 族化合物 GaAs 中, 引起自旋弛豫的机制包括 D'yakonov-Perel (DP) 机制, Elliott-Yafet(EY) 机制以及 Bir-Aronov-Pikus(BAP) 机制。Kikkawa 和 Awschalom 在低温下发现, n 型体材料的自旋弛豫时间在金属-绝缘体相变处出现了峰值[1], 这正是各种弛豫机制相互竞争的结果, 在量子阱中也有类似的结果[2]。一般来说只有在相对低温下, EY 机制和 BAP 机制才会变得重要[1,3], 而在高温区域起主导作用的是 DP 机制。

在闪锌矿结构半导体二维体系中, 自旋-轨道耦合主要包括 Dresselhaus 项和 Rashba 项, 这两项引起的导带自旋分裂是 DP 机制的主要来源。由于这两项的相互作用, 会引起自旋性质很多有趣的现象, 例如最近发现的持续自旋螺旋效应 (persistent spin helix, PSH) [4,5]。Dresselhaus 项由体反转不对称性 (BIA) 引起的, 是材料的一种固有属性, 大小在二维体系和量子阱限制能有关; Rashba 项由结构反转不对称性 (SIA) 引起, 来源于带边的不连续性和空间电荷非对称分布或者外加电场[6,7], 大小跟电场强度成正比。Rashba 项可以通过各种手段来控制, 常用方法有外加门电压[8,9]、控制 δ 掺杂的位置[10,11]、调制掺杂[5,12]、不对称限制势[13,14]。这些方法用来操控自旋, 对实现自旋晶体管非常有帮助。Schliemann 等人[15]在此基础上提出了非弹道区域的自旋晶体管的概念, 同时期 Cartoixa 等人还提出了共振自旋寿命晶体管 (a resonant spin lifetime transistor) [16]模型。图 3.1 为共振自旋寿命晶体管的工作原理: 当电压开启的时候 Rashba 与 Dresselhaus 项大小相当, [110]方向自旋寿命寿命非常长, 电子通过导电通道后能保持自旋极化; 当电压关闭时, 自旋受 DP 机制作用, 电子

在通过导电通道后自旋极化完全丧失；分别将这两种状态定义为 0 态和 1 态，可以用来实现逻辑运算。由于 DP 机制在高温区域起主导作用，基于 DP 机制设计的自旋电子器件在室温下工作将成为可能。

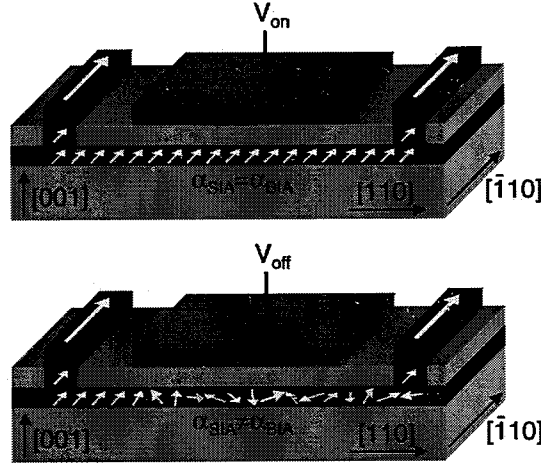


图 3.1 共振自旋寿命晶体管工作原理， α_{SIA} 和 α_{BLA} 分别是 Rashba 和 Dresselhaus 系数。

3.1.1 (001) 取向量子阱中自旋寿命的各向异性

在闪锌矿半导体材料中，自旋-轨道分裂来源于 Dresselhaus 项，正比于波矢 $\vec{k}$ 的三次方。在量子阱结构，沿着生长方向的电子动量是量子化的，相应的哈密顿量必须对这量子化的动量求平均，这将导致 Dresselhaus 哈密顿量分成线性项和立方项。通常认为，在量子阱尤其是在窄量子阱中，高阶项非常小，可以忽略不计，因此我们暂不考虑立方项的影响。

我们考虑在 (001) 方向生长的量子阱中， z 方向沿着生长方向 [001] 方向，即生长方向， $x//[1\bar{1}0]$, $y//[110]$ 。Dresselhaus 自旋-轨道耦合线性项的哈密顿量形式为：

$$H_{BLA} = \beta(\sigma_x k_y + \sigma_y k_x) \quad (3-1)$$

其中 $\sigma_{x,y}$ 是 Pauli 矩阵， $k_{x,y}$ 是波矢在量子阱面内的分量， β 是 Dresselhaus 线性项系数。

如果引入结构不对称性, 将会出现 Rashba 自旋-轨道耦合项, 其哈密顿量形式为:

$$H_{SLA} = \alpha(\sigma_x k_y - \sigma_y k_x) \quad (3-2)$$

其中 $\alpha = \alpha_0 E$ 是 Rashba 系数, α_0 是一个正的常数, E 是电场强度。

当所研究的系统同时存在 Rashba 和 Dresselhaus 项时, 根据 DP 自旋弛豫机制, 可以得到各向异性的自旋弛豫速率[17]:

$$1/\tau_z = C(\alpha^2 + \beta^2)\tau_p, 1/\tau_{x,y} = \frac{C}{2}(\alpha \pm \beta)^2\tau_p \quad (3-3)$$

其中 $\tau_{x,y,z}$ 是自旋沿着 $x//[1\bar{1}0]$, $y//[110]$, $z//[001]$ 方向的自旋寿命, τ_p 是动量弛豫时间。根据此结果, 我们可以看到一个明显并非常有趣的现象, 自旋寿命具有很强的各向异性, 尤其当 $\alpha = \pm\beta$ 时, $[1\bar{1}0]$ (或者 $[110]$) 方向的自旋寿命将变得无限长, 而另一个方向的自旋寿命跟 z 方向的一致。这里要指出的是, 在系统只存在一种自旋分裂项时, 不管 Rashba 项还是 Dresselhaus 项, 它们都是各向同性的。自旋弛豫各向异性是 Rashba 和 Dresselhaus 项相互作用的结果, 其各自等效的有效磁场在一个方向上相互抵消, 而在另一个方向相互叠加。文献[18]给出了不同强度 Rashba 和 Dresselhaus 项时的物理图像, 如图 3.2 所示, 图中左边是二维能带结构, 右边是费米面处自旋取向分布, (a) (b) (c) 为只存在其中一种自旋分裂的情况, (d) (e) 同时存在两种自旋分裂的情况。

在上面的讨论中, 我们只考虑 Dresselhaus 线性项, 忽略了立方项。在很多情况下, 尤其在电子浓度相对较高以及高温区域, 电子占据更高的 k 态, 会使立方项越来越重要, 这种情况下, 必须考虑立方项的影响。由于立方项的影响, 自旋寿命不会无限长, 并且满足一定条件的时候, 自旋寿命的面内各向异性会消失。在这方面, Averkiev 等人[19]做了详细的数值计算。在低温时, 自旋弛豫的面内各向异性比较明显, 随着温度的升高, 面内自旋各向异性慢慢减小, 当温度达到:

$$T = \frac{\hbar^2 \langle k_z^2 \rangle}{mk_B(1+\nu/2)} \quad (3-4)$$

以上时，自旋弛豫的面内各向异性消失，但 z 方向的自旋弛豫速率一直比面内两个分量的要大。

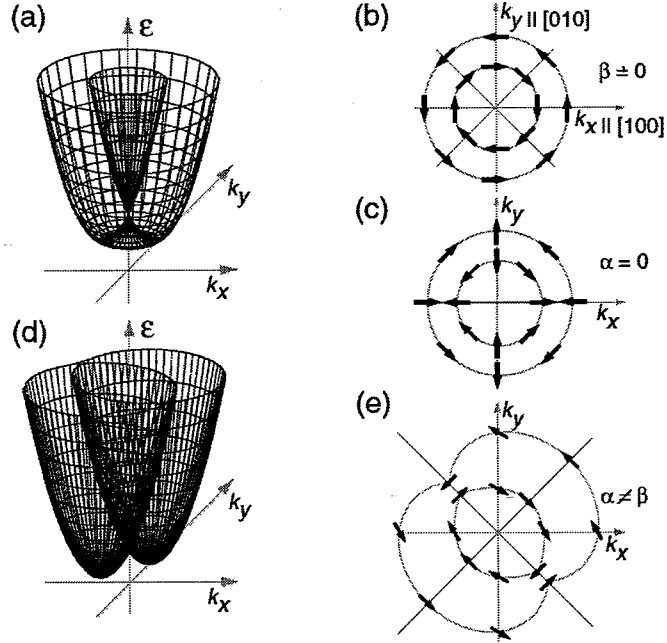


图 3.2 不同 Rashba 和 Dresselhaus 项强度时的（左边）二维能带结构；（右边）费米面处自旋取向分布；(a) (b) (c) 只存在其中一项的情况；(d) (e) 两项同时存在的情况。

(001) 取向 GaAs/AlGaAs 量子阱中自旋弛豫的各向异性非常重要，它是实现共振自旋寿命晶体管这类自旋电子器件的物理基础。在实验上，尤其在高温区域，实现对自旋寿命的控制，是很多研究者致力研究的课题。Averkiev 等人 [20] 观察了 (001) 取向 GaAs/AlGaAs 不对称量子阱的 Hanle 效应，发现在 77K 磁场 B 沿 $[110]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 方向 Hanle 曲线的半宽呈现很强的各向异性，如图 3.3 所示。他们认为这种各向异性来源于面内自旋弛豫的各向异性，而自旋弛豫的各向异性是由于不对称限制势引入的 Rashba 项与 Dresselhaus 项干涉的结果，并给出 Rashba 系数 α 与 Dresselhaus 系数 β 的比值为 4。实际上，这个结论跟之后的实验结果是不符合的。在 GaAs/AlGaAs 量子阱中，由于势垒中铝组分改变引起的不对称限制势，并不能引入可观测的 Rashba 项，这也是我们实验的一

一个重要结果，将在后面做更详细的介绍。Larionov 等人[8]在 n-i-n 结构中研究了电场对 Rashba 自旋-轨道耦合的控制，根据自旋寿命的各向异性情况得出不同电场下 Rashba 项与 Dresselhaus 项强度的比值；Stich 等人[12]观察了单边调制掺杂量子阱的磁各向异性。然而这些工作都是在低温区域（前者 2K，后者 4.5K）的结果。

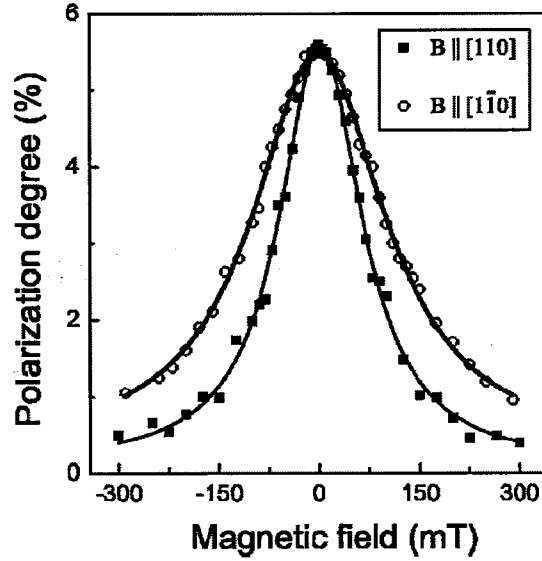


图 3.3 磁场分别沿 $[110]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 方向的 Hanle 曲线，样品为 (001) 不对称量子阱。

3.1.2 磁场下面内自旋分裂的各向异性（理论）

在半导体中，由于时间、空间对称性的破缺和自旋-轨道耦合，电子或空穴的自旋简并会被解除，也就是出现自旋分裂。自旋分裂对于研究半导体性质，尤其是半导体中的自旋性质非常重要。在磁场为 0 的情况下，由于闪锌矿结构半导体的晶体结构具有体反转不对称性（BIA），会引入 Dresselhaus 自旋分裂项；而在准二维的量子阱或异质结中，由于结构反转不对称性（SIA）又会引入 Rashba 自旋分裂项。这两项对自旋弛豫过程有重要影响，这在前面 3.1 节中已经做了详细描述。在磁场不为 0 的情况下，最主要的自旋分裂项来源于塞曼分裂，其大小一般用有效朗德因子 g^* 来表征：

$$\Delta E = g^* \mu_B B \quad (3-5)$$

其中 μ_B 是波尔磁子, B 是外加磁场。 g 因子是半导体材料中的一个非常重要的基本参数。对于半导体中的朗德因子的研究由来已久, 真空中自由电子 g 因子为 2, 但在半导体材料中, 由于自旋-轨道耦合的作用, 实际电子 g 因子会偏离这个值, 这就出现了电子有效 g 因子- g^* 的概念。在自旋-轨道耦合很强的材料中, g^* 会远远偏离自由电子 g 因子, 如在 GaAs 中 $g^* = -0.44$, CdTe 中 $g^* = -1.64$, InSb 中 $g^* = -51$ 。在低维结构中, 由于量子限制效应, g 因子会表现出一些新的特性, 例如, 在二维量子阱中, g 因子不再是个标量, 其垂直和平行量子阱的分量不再相同: $g_{\perp} \neq g_{\parallel}$ [21~23]。这是由于量子限制作用使得点群对称性由 T_d 降低为 D_{2d} 。如果进一步将点群对称性降低为 C_{2v} , 即在不对称量子阱中, 又会出现面内各向异性, 即面内 g 因子出现了非对角元项: $g_{xy} = g_{yx} \neq 0$ [23,24]。

除了塞曼项, Dresselhaus 自旋-轨道耦合项在磁场下会产生额外的自旋分裂项。由于额外自旋分裂项的存在, 将导致磁场下面内自旋分裂很强的各向异性。Winkler 在 “Spin-Orbit Coupling Effects in Two-Dimensional Electron and Hole Systems” 一书中对此现象做了详细的讨论[24]。他将一阶微扰理论应用到 Dresselhaus 线性项中, 得出

$$\begin{aligned} H_{6c6c}^b &= b_{41}^{6c6c} \langle k_z^2 \rangle (-\tilde{\kappa}_x \sigma_x + \tilde{\kappa}_y \sigma_y) \\ &\quad + b_{41}^{6c6c} (\langle k_z^2 \rangle \langle z \rangle - \langle \{k_z^2, z\} \rangle) \frac{e}{\hbar} (B_y \sigma_x + B_x \sigma_y) \quad (3-6) \\ &= b_{41,1}^{6c6c} (-\tilde{\kappa}_x \sigma_x + \tilde{\kappa}_y \sigma_y) + b_{41,2}^{6c6c} (B_y \sigma_x + B_x \sigma_y) \end{aligned}$$

其中第一项会对 (3-5) 式中磁场大小进行一个修正, 总磁场变为外磁场加上一个内建的有效磁场。不过在通常情况下这个内建磁场非常小, 可以忽略不计, 这里不做详细讨论。我们着重考虑第二项, 其中 $\langle k_z^2 \rangle \langle z \rangle - \langle \{k_z^2, z\} \rangle$ 在对称量子阱中为 0, 所以这一项的存在还要求量子阱具有不对称结构, 是体反转不对称

性和结构不对称共同作用的结果。由于这一项的存在，磁场下的自旋分裂项 (3-5) 式变为：

$$\Delta E = GB_{\parallel} = (g^* \mu_B - 2\zeta b_{41,2}^{6c6c}) B_{\parallel} \quad (3-7)$$

其中 $\mathbf{B} \parallel [1-10]$ 时 $\zeta = +1$ ， $\mathbf{B} \parallel [110]$ 时 $\zeta = -1$ 。我们可以看到，由于 $b_{41,2}^{6c6c}$ 项的存在，自旋分裂变为各向异性。虽然这一项和塞曼项有本质不同，但从最终的结果来看，和塞曼项非常类似，所以我们称它为类塞曼项。

由此我们可以看到，磁场下自旋分裂面内各向异性有两个来源：1) 有效 g 因子的各向异性，2) 类塞曼项的存在。事实上，有效 g 因子各向异性导致的塞曼分裂各向异性程度非常小，可以忽略不计[24]。那么磁场下面内自旋分裂各向异性主要是由类塞曼项引起的。这我们将会在后面结合实验数据和理论计算做更详细的分析。

3.2 (001) 取向不对称量子阱(单边倾斜势垒)的实验研究

3.2.1 样品设计和生长

为了引入结构不对称性，从而实现对自旋动力学的操控，我们根据能带工程设计了 (001) GaAs/AlGaAs 不对称量子阱 (单边倾斜势垒)，图 3.4 为量子阱限制势示意图。



图 3.4 限制势垒不对称 GaAs 量子阱示意图

样品是利用分子束外延在 (001) 半绝缘 GaAs 衬底上生长的。样品具体结构如图 3.5 所示。首先在衬底上生长 500nm 的 GaAs 缓冲层，再生长 300nm AlGaAs 势垒层 (Al 组分为 0.28)，8nm GaAs 量子阱，9nm 铝组分渐变层 (Al 组分从 0.0428 到 0.28 渐变)，100nm AlGaAs 势垒层，1nm GaAs 盖层防止氧化。

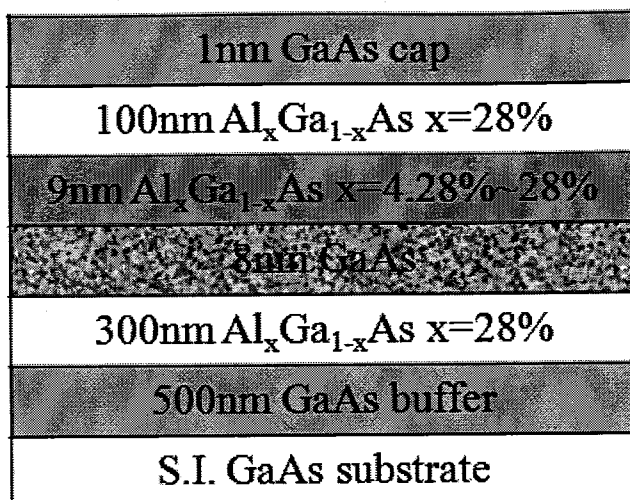


图 3.5 (001) GaAs/AlGaAs 不对称量子阱样品结构图

3.2.2 实验方法和配置

本实验采用时间分辨的克尔旋转技术 (TRKR) 研究自旋动力学过程, 如图 3.6 所示。样品被放置在牛津公司的磁光低温恒温系统中, 温度 1.5K-300K 范围内连续可调, 最大能提供 8 特斯拉的均匀磁场。激光器为相干公司的掺钛蓝宝石锁模激光器, 飞秒和皮秒模式可以进行转换, 此实验采用的是飞秒, 脉冲宽度 120fs, 重复频率 76MHz, 波长范围 700nm~1000nm 连续可调。激发光和探测光近垂直入射到样品表面, 并被汇聚成直径~100 μm 的光斑, 平均功率分别为 5mW 和 0.5mW。探测光经过精密平移台延迟系统, 用来调节与激发光脉冲的时间差 Δt 。激发波长选择克尔信号最大处即克尔共振波长 (参见第二章 2.4 节自旋的探测部分中关于时间分辨克尔/法拉第旋转光谱的介绍)。磁场平行于量子阱平面, 即 Vio_{gt} 几何位型。样品晶向被选择性放置, 同时放置两块从同一 wafer 切割下来的样品, 但晶体取向不同, 一块 [110] 方向与磁场平行, 另一块 [1-10] 方向与磁场平行。圆偏振的激发光照射到样品表面, 被样品吸收产生垂直样品表面方向的自旋极化, 通过记录线偏振探测光经过样品后产生的克尔旋转角随延迟时间的变化, 来测量自旋的衰退过程。克尔信号采用二级锁相放大技术提取, 泵浦光被光弹调制器 (PEM) 调制, 探测光被斩波器 (Chopper) 调制, 调制频率分别输给一级和二级锁相放大器锁频。TRKR 实验原理和配置情况可参考赵宏鸣的中国科学院研究生院博士学位论文《半导体低维结构中自

旋-轨道耦合性质的实验研究》。

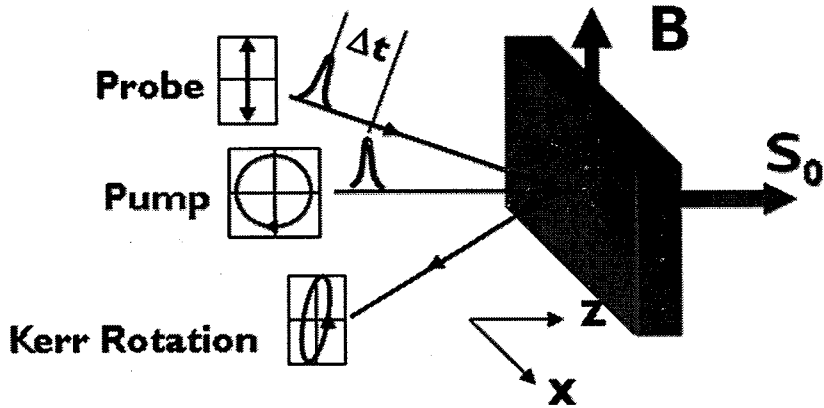


图 3.6 时间分辨克尔旋转实验示意图，磁场方向在量子阱面内。

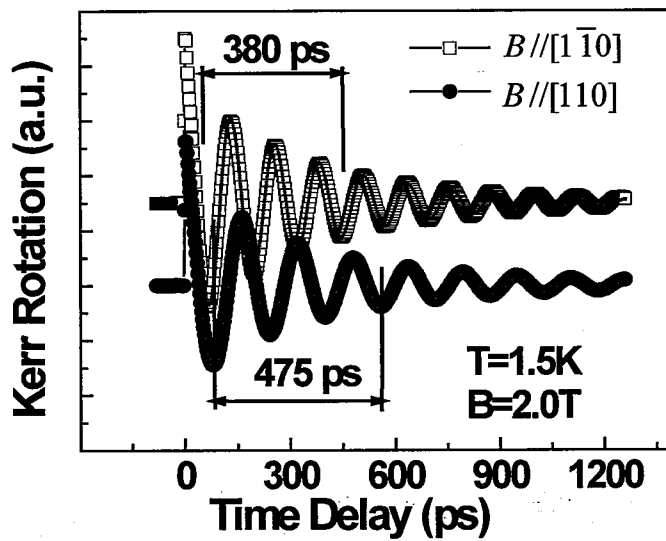


图 3.7 磁场分别沿 $[110]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 方向的克尔信号数据，温度 1.5K，磁场大小为 2.0T。

3.2.3 磁场下面内自旋分裂的各向异性（实验数据分析）

图 3.7 为在 1.5K 下测得的实验数据，磁场大小为 2T。我们可以看到磁场 $B//[1\bar{1}0]$ 方向和 $B//[110]$ 方向的自旋进动频率是明显不同的。以三个进动周期来看， $B//[1\bar{1}0]$ 时经历了 380ps，而 $B//[110]$ 则经历了 475ps。实验数据可以用一

个单一指数衰退的余弦函数来拟合：

$$S_{\perp}(t) = S_0 \exp(-t/\tau_s) \cos(\omega t) \quad (3-8)$$

其中 S_0 为初始自旋极化， τ_s 为自旋寿命， ω 为拉莫进动频率，图 3.7 中红色实线是拟合曲线，可以看出实验数据与拟合曲线吻合很好。根据进动频率，我们可以求出磁场下的自旋分裂能： $\Delta E = \hbar \omega$ 。磁场沿 $[110]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 方向的自旋分裂能分别为： $\Delta E_{B//[110]} = 0.0263 \text{ meV}$ 和 $\Delta E_{B//[1\bar{1}0]} = 0.0326 \text{ meV}$ 。两个方向的自旋分裂能差别是很明显的，我们用 $|\Delta E_{[1\bar{1}0]} - \Delta E_{[110]}| / |\Delta E_{[1\bar{1}0]}|$ 来标定各向异性程度，可以达到 19%。同时我们观察了不同激发功率的自旋进动过程，发现自旋进动频率对激发功率的依赖性非常弱，如图 3.8 所示，两个磁场方向下的自旋分裂能随激发光功率增加都只略微减小，不超过 7%，因此我们认为这种面内自旋分裂的各向异性不随激发功率或者说不随光生载流子浓度改变。

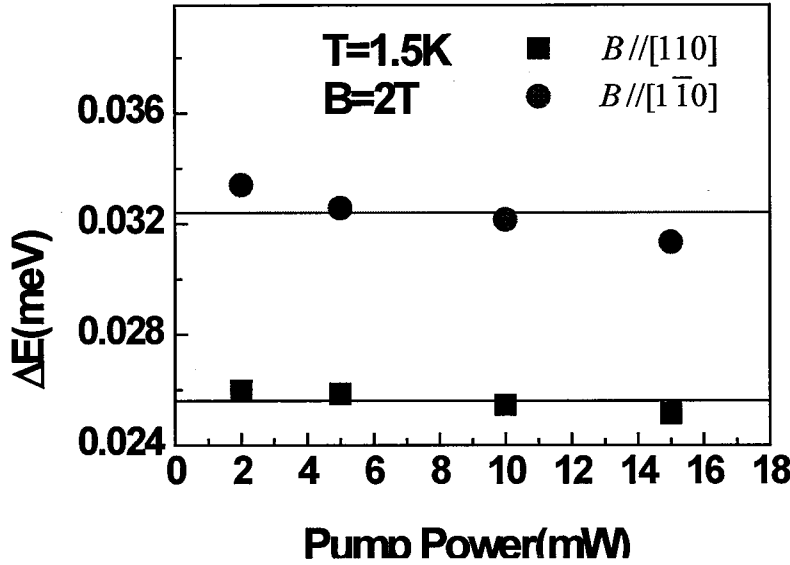


图 3.8 磁场下面内自旋分裂能不依赖激发功率。

现在我们根据 3.1.2 节中介绍的类塞曼项对实验数据进行分析。在磁场下，自旋分裂主要由塞曼分裂项和类塞曼分裂项两部分组成，见公式 (3-7)，其中

$$b_{41,2}^{6c6c} = \frac{e}{\hbar} \gamma \left(\langle k_z^2 \rangle \langle z \rangle - \langle \{ k_z^2, z \} \rangle \right) \quad (3-8)$$

γ 为 Dresselhaus 系数。根据公式 (3-7)，自旋分裂能的大小线性依赖于外加磁场的大小，如图 3.9 所示，跟预期的一样，磁场 $\mathbf{B}//[1\bar{1}0]$ 和 $\mathbf{B}//[110]$ 时，自旋分裂能 ΔE 都线性依赖于磁场大小。利用线性拟合可以给出参数： $G = g^* \mu_B - 2\zeta b_{41,2}^{6c6c}$ ，两个磁场方向下此参数分别为： $G_{[110]} = 0.0130 \text{ meV/T}$ 和 $G_{[1\bar{1}0]} = 0.0162 \text{ meV/T}$ 。然后通过这两个参数相加和相减，可以得出： $b_{41,2}^{6c6c} = 0.8 \mu\text{eV/T}$ 以及电子有效 g 因子： $g^* = 0.25$ 。结合相关样品参数，可以计算得出量子阱中 Dresselhaus 系数 $\gamma = 17.1 \text{ eV/\AA}^3$ (此结果是 R. T. Harley 根据我们的实验数据和样品结构信息计算得出的。我们认为相对准确，文章中给出的数值 $\gamma = 29.96 \text{ eV/\AA}^3$ 偏大)。文献[25]中给出 GaAs 体材料 $\gamma = 19.55 \text{ eV/\AA}^3$ ，在量子阱中， γ 由于量子阱限制会降低。

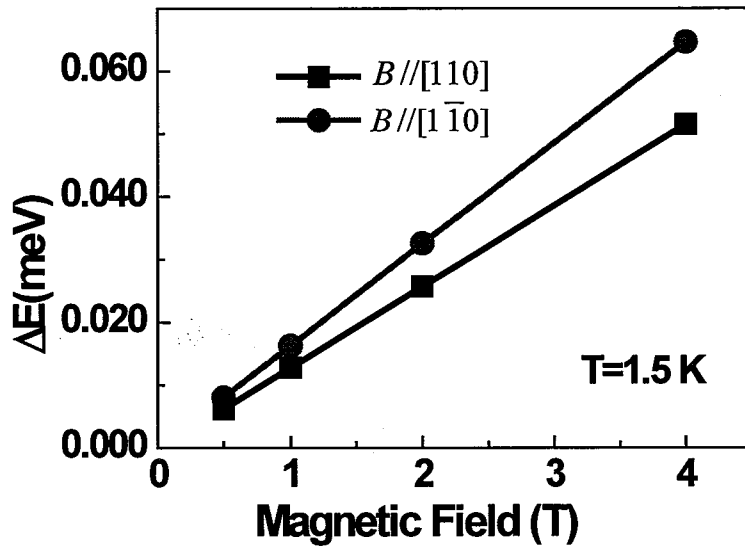


图 3.9 自旋分裂能线性依赖磁场大小。

在不对称量子阱中，有效 g 因子的各向异性也会引入自旋分裂的各向异性，但是在我们的样品中，这项可以忽略不计。根据文献[24]中方程 (7.4) 描述的塞曼分裂各向异性项： $H_{6c6c}^{z,r,b} = z_{41}^{6c6c} \varepsilon_z (B_y \sigma_x + B_x \sigma_y)$ ，我们进行了数值计算，将 GaAs 的相关参数代入式中，并假设此不对称量子中有足够强的电场 50kV/cm，

可以得出其前置因子： $z_{41}^{6c6c} \varepsilon_z = 0.039 \mu eV / T$ 。这个值只有类塞曼项前置因子的二十分之一，在实验中无法分辨这一项。因此在磁场下面内自旋分裂的各向异性主要由类塞曼项引起，来源于 Dresselhaus 自旋-轨道耦合加上量子阱中限制势的不对称性。

事实上，由于势垒铝组分渐变引入的不对称限制势量子阱中并不存在有效电场。因为如果存在电场，将会引入 Rashba 自旋-轨道耦合项，与 Dresselhaus 项相互作用，最终在实验上将能观察到自旋弛豫的面内各向异性。然而如图 3.7 所示，我们虽然观察到自旋进动频率不同，但两个磁场方向下自旋的弛豫过程是基本相同的，因此我们认为在 (001) GaAs/AlGaAs 体系铝组分渐变引起的不对称限制势并不能引入可观测的 Rashba 自旋-轨道耦合项。此结果与 Eldridge 等人[26,27]的结果一致，这是由于 GaAs/AlGaAs 具有同形结构 (isomorphous)，导带和价带电场在量子阱两个界面都能相互抵消，有效的平均电场为 0，最终在量子阱中并不存在 Rashba 项。

Kalevich 和 Korenev 最早提出，在这种不对称量子阱中存在电子面内磁响应的各向异性[23]。在他们的模型中，认为这种各向异性是电子 g 因子的各向异性，将类塞曼项归入了 g 因子的非对角元项： g_{xy} (g_{yx})。但从本质上，他们跟 Winkler[24]讨论的是同一种现象。在实验上，Oestreich 等人[28]在 1996 年利用外加门电压的方式降低量子阱的点群对称性，观察到了不同磁场方向的自旋进动各向异性，他们采用了 Kalevich 和 Korenev 的理论模型进行解释，认为是电子面内 g 因子的各向异性。直到最近的一些工作[27,29]，也这么认为。根据以上的分析，我们知道这跟真正的塞曼分裂项是有本质区别的。

3.2.4 自旋分裂各向异性的温度依赖关系

我们详细测量了磁场下面内自旋分裂能随温度的依赖关系，如图 3.10 所示，两个磁场方向下的自旋分裂能都随温度升高而减小。有趣的是，它们之间的差异也越来越小，到 200K 以上时就变得基本一样了。为了更清楚地描述各向异性随温度的依赖关系，我们做了各向异性程度 $|\Delta E_{[1\bar{1}0]} - \Delta E_{[110]}| / |\Delta E_{[1\bar{1}0]}|$ 随温度的

曲线, 如图 3.11。各向异性的减小并消失, 我们认为这是由于温度升高造成量子阱中自旋的相干长度不再是一个常数[30,31]。而在我们讨论的类塞曼分裂项中默认了电子在碰撞前是位相相干的。根据实验数据我们还可以得出面内有效 g 因子, 如图 3.11 中插图所示。在 1.5K 时 $g^* = 0.25$, 这跟文献[32]中具有相同铝组分的 10nm 宽量子阱结果 $g^* = 0.26$ 非常接近。并且有效 g 因子随温度升高而减小的依赖关系, 也跟以前的研究结果吻合地很好[33~35]。

此结果已整理成文章发表在 Nanoscale Research Letters 2011,6:520。

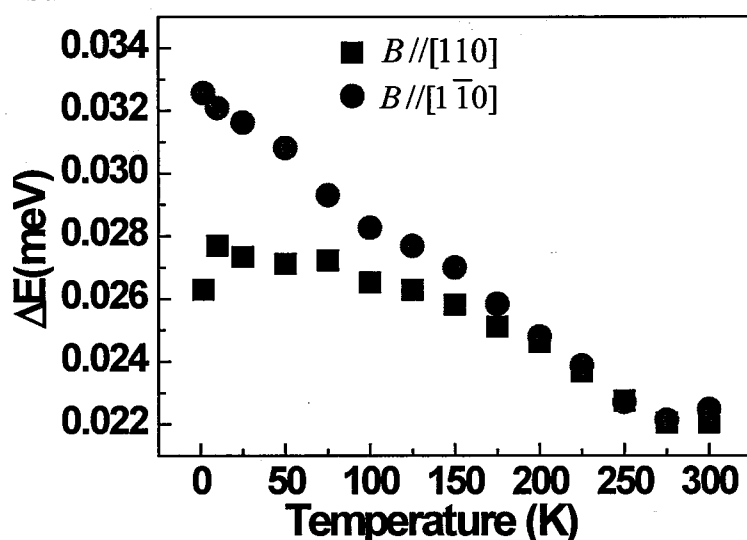


图 3.10 自旋分裂能随温度的依赖关系, $B=2T$ 。

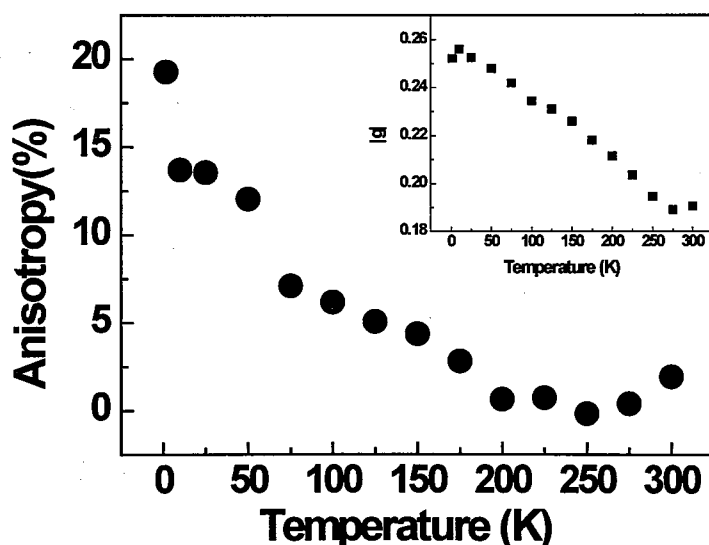


图 3.11 面内自旋分裂各向异性程度以随温度的依赖关系, $B=2T$ 。插图是面内 g 因子随温度的依赖关系

3.3 (001) 取向单边掺杂不对称量子阱

3.3.1 样品结构与实验配置

为了通过能带工程在 (001) GaAs/AlGaAs 量子阱引入 Rashba 自旋-轨道耦合, 然后利用 Rashba 项和 Dresselhaus 项的相互作用, 从而实现对自旋弛豫的控制, 我们还采用了单边调制掺杂的方式引入量子阱的不对称性。样品利用分子束外延生长在 (001) 半绝缘 GaAs 衬底。图 3.12 为样品具体结构: 半绝缘 (001) GaAs 衬底/500nm GaAs 缓冲层/48nm AlGaAs 势垒层/12nm GaAs 量子阱/15nm AlGaAs 势垒层/调制掺杂层/17nm AlGaAs 势垒层/1nm GaAs 盖层。其中势垒层的铝组分为 0.3, 掺杂采用 δ 掺杂的方式, 每隔 2nm 掺一次, 共八个周期, 掺杂浓度 $n=8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 。

实验采用时间分辨克尔旋转技术进行测量, 配置跟 3.2.2 节中介绍的基本一样。

1nm GaAs Cap	
17nm Al _{0.3} Ga _{0.7} As Barrier	
δ-Si 8e ¹¹ /cm ²	8 repeats
2nm Al _{0.3} Ga _{0.7} As Spacer	
15nm Al _{0.3} Ga _{0.7} As Barrier	
12nm GaAs QW	
48nm Al _{0.3} Ga _{0.7} As Barrier	
500nm GaAs buffer	
(001) S. I. GaAs substrate	

图 3.12 (001) 取向 GaAs/AlGaAs 单边掺杂不对称量子阱结构

3.3.2 单边掺杂量子阱中自旋性质的各向异性

图 3.13 为 $T=30\text{K}$ 时, 零磁场以及磁场分别沿 $[110]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 方向的自旋动力学过程。我们观察到面内自旋弛豫的各向异性非常明显, 并且垂直量子阱方向

的自旋弛豫速率跟面内弛豫比较慢的分量基本一样。同时我们也注意到自旋进动频率在磁场沿 $[110]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 方向也是不同的。而图 3.13 插图中显示的是 $T=200\text{K}$ 时自旋动力学过程, 此时自旋进动的各向异性已经消失, 面内自旋弛豫各向异性也消失, 然而面内自旋寿命比垂直量子阱方向自旋寿命要长。自旋进动的各向异性我们认为跟 3.1.2 和 3.2.2 节讨论的一样, 是由 Dresselhaus 项加上不对称量子阱环境引起的。随着温度的升高, 各向异性程度慢慢减小, 最终消失, 见图 3.14。这里的各向异性程度比 3.2.2 节的情况小, 30K 时只有 2.5%。

自旋弛豫速率的各向异性是 Rashba 项与 Dresselhaus 项相互作用的结果。用函数: $S_{\perp}(t) = S_0 \exp(-t/\tau_s) \cos(\omega t)$ 来拟合可以得出自旋弛豫速率; 对于磁场 $B>0$ 时 $1/\tau_s = \frac{1}{2}(1/\tau_{\perp} + 1/\tau_{\parallel})$, 而 $1/\tau_{\perp}$ 则可以从 $B=0$ 时得到。

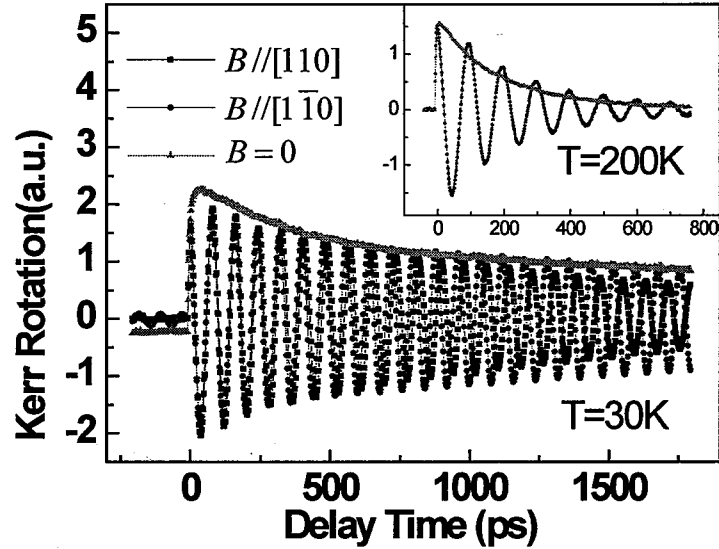


图 3.13 不同磁场方向的克尔信号, $T=30\text{K}$, $B=2.0\text{T}$ 。插图中 $T=200\text{K}$ 。

图 3.15 为 (001) 取向 GaAs/AlGaAs 单边掺杂量子阱三个方向的自旋弛豫速率的温度依赖关系。在 $T>100\text{K}$ 时, 面内两个分量的自旋弛豫速率基本相同, 但比垂直分量的自旋弛豫速率 $1/\tau_{\perp}$ 要小。这跟 DP 理论在考虑 Dresselhaus 三次方项影响的理论结果[19]符合得很好, 见 3.1.1 节。100K 以下的的数据有点复杂, 与理论不是那么符合, 我们暂且不考虑。

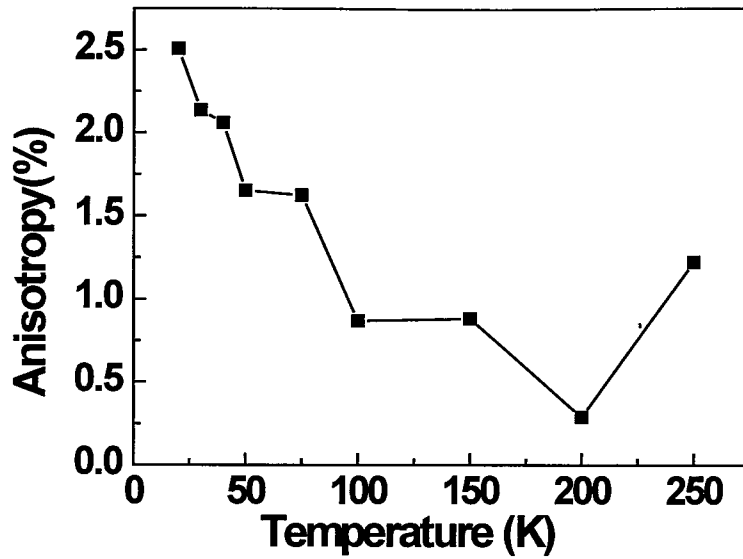


图 3.14 磁场下面内自旋分裂各向异性程度的温度依赖关系， $B=2.0\text{T}$ 。

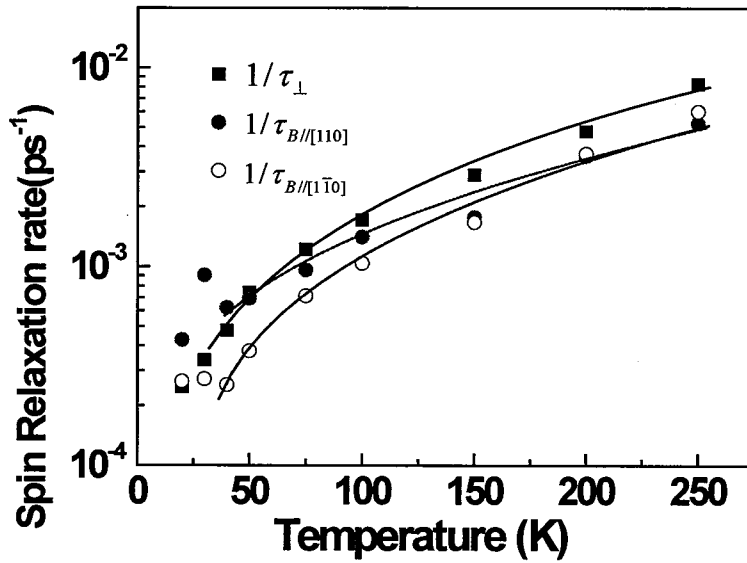


图 3.15 三个方向的自旋弛豫速率随温度的依赖关系。

3.3.3 实验中存在的一些问题以及后续工作

以上分析结果表明，(001) 取向 GaAs/AlGaAs 量子阱利用单边调制的方法造成量子阱的不对称性，能够引入有效的 Rashba 项，同时也导致磁场下类塞曼项的存在。这方面的工作很有意义，然而我们的实验中还存在一些问题。首先，时间分辨克尔旋转测量过程中，激发波长的选择并不准确。通常情况下我们都选择克尔共振波长（即克尔信号最大的波长）作为激发波长 λ_{Kerr} ，此波长能量应该比量子阱 PL 谱中心波长 λ_{PL} 能量略微大一点。如图 3.16 所示，100K 以上

时激发波长的选择没有问题,跟PL光谱中心波长吻合挺好,但100K以下时 λ_{Kerr} 对应光子能量却比 λ_{PL} 能量低。我们怀疑这是由于12nm宽的量子阱共振波长跟GaAs带边的激发波长靠得很近,而脉冲激光的波长半高宽有10nm,因此受衬底影响,激发波长选择得并不准确。其次,在 $T=20K$ 时电子面内有效 g 因子 $g^*=0.446$,与GaAs体材料的 g 因子非常接近。因此我们怀疑低温下的实验数据可能来自于体材料,当然单纯的体材料是不具有我们观察到的这些自旋性质的,更可能的情况是量子阱的信号跟体材料的信号混合在一起了。最后,我们测得20K时的自旋寿命非常长(可以达到几个ns),这在高质量的二维电子气中是不正常的(通常只有几百ps),因此我们怀疑量子阱的质量并不是很好,在低温下电子可能被一些缺陷中心限制。因此在100K以下的自旋弛豫过程就变得非常复杂,这就解释了为什么实验数据与DP理论的结果不吻合。

为了确认这个实验中得到的结果,接下来的工作必须解决以上所提到的问题。

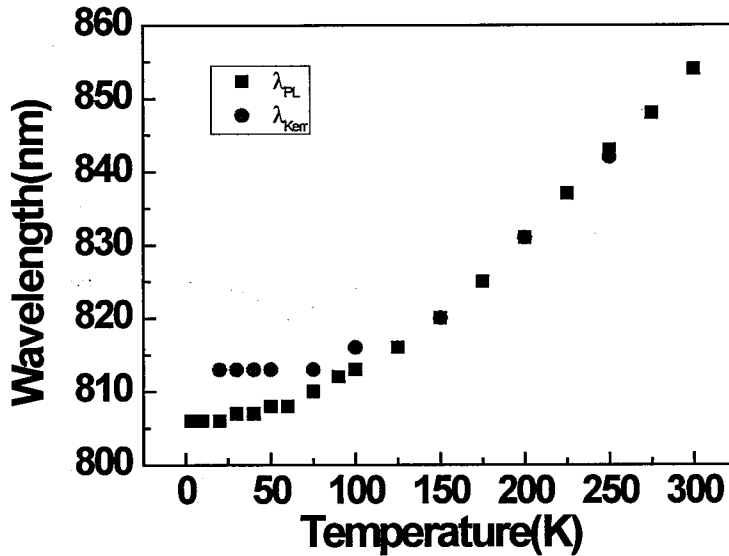


图 3.16 克尔共振波长与量子阱 PL 中心波长对比。

3.4 本章小结

本章研究了(001)取向 GaAs/AlGaAs 不对称量子阱中的自旋动力学性质。

为引入量子阱结构不对称性，我们设计了两种结构，一种结构不对称性由倾斜势垒引入，一种结构不对称性由单边调制掺杂引入。在倾斜势垒不对称限制势量子阱中发现了磁场下面内自旋分裂的各向异性，证实了类塞曼项的存在。并发现这种不对称性不能引入有效的 Rashba 项。此结果已整理成文章发表于 *Nanoscale Research Letters* 2011, 6, 520。在单边调制掺杂不对称量子阱中，同时观察到了自旋弛豫的各向异性和面内自旋分裂的各向异性。实验数据表明，在研究 DP 自旋弛豫机制时高温区域必须考虑 Dresselhaus 三次方项的影响。然而在低温下的数据还存在一定的问题，需要做进一步的研究。

参考文献

- [1] J. M. Kikkawa and D. D. Awschalom, *Phys. Rev. Lett.*, **1998**, 80, 4313.
- [2] J. S. Sandhu, A. P. Heberle, J. J. Baumberg and J. R. A. Cleaver, *Phys. Rev. Lett.*, **2001**, 80, 2150.
- [3] Pil Hun Song and K. W. Kim, *Phys. Rev. B*, **2002**, 66, 035207.
- [4] B. A. Bernevig, J. Orenstein and S.-C. Zhang, *Phys. Rev. Lett.*, **2006**, 97, 236601.
- [5] J. D. Koralek, C. P. Weber, J. Orenstein, B. A. Bernevig, S.-C. Zhang, S. Mack and D. D. Awschalom, *Nature*, **2009**, 458, 610.
- [6] E. A. de Andrada e Silva, G. C. La Rocca and F. Bassani, *Phys. Rev. B* **1997**, 55, 16293.
- [7] P. Pfeffer, *Phys. Rev. B* **1999**, 59, 15902.
- [8] A. V. Larionov and L. E. Golub, *Phys. Rev. B* **2008**, 78, 033302.
- [9] O. Z. Karimov, G. H. John, R.T. Harley, W. H. Lau, M. E. Flatte, M. Hnini and R. Airey, *Phys. Rev. Lett.* **2003**, 91, 246601.
- [10] P. Olbrich, J. Allerdings, V. V. Bel'kov, S. A. Tarasenko, D. Schuh, W. Wegscheider, T. Korn, C. Schüller, D. Weiss, and S. D. Ganichev, *Phys. Rev. B* **2009**, 79, 245329.
- [11] V. Lechner, L. E. Golub, P. Olbrich, S. Stachel, D. Schuh, W. Wegscheider, V. V. Bel'kov and S. D. Ganichev, *Appl. Phys. Lett.* **2009**, 94, 242109.
- [12] D. Stich, J. H. Jiang, T. Korn, R. Schulz, D. Schuh, W. Wegscheider, M. W. Wu, and C. Schüller, *Phys. Rev. B* **2007**, 76, 073309.
- [13] E. A. de Andrada e Silva, G. C. La Rocca and F. Bassani, *Phys. Rev. B* **1997**, 55, 16293.
- [14] Y. F. Hao, Y. H. Chen, Y. Liu and Z. G. Wang, *Europhys. Lett.* **2009**, 85, 37003.
- [15] J. Schliemann, J. C. Egues and D. Loss, *Phys. Rev. Lett.*, **2003**, 90, 146801.
- [16] X. Cartoixa, D. Z.-Y. Ting and Y.-C. Chang, *Appl. Phys. Lett.* **2003**, 83, 1462.
- [17] N. S. Averkiev and L. E. Golub, *Phys. Rev. B* **1999**, 60, 15582.

- [18]S. D. Ganichev, V. V. Bel'kov, L. E. Golub, E. L. Ivchenko, P. Schneider, S. Giglberger, J. Eroms, J. De Boeck, G. Borghs, W. Wegscheider, D. Weiss and W. Prettl, *Phys. Rev. Lett.*, **2004**, 92, 256601.
- [19]N. S. Averkiev, L. E. Golub and M. Willander, *Semiconductor*, **2002**, 36, 97.
- [20]N. S. Averkiev, L. E. Golub, A. S. Gurevich, V. P. Evtikhiev, V. P. Kochereshko, A. V. Platonov, A. S. Shkolnik and Yu. P. Efimov, *Phys. Rev. B* **2006**, 74, 033305.
- [21]E. L. Ivchenko and A. A. Kiselev, *Sov. Phys. Semicond.* **1992**, 26, 827.
- [22]V. K. Kalevich, and V. L. Korenev, *JETP Lett.* **1992**, 56, 253.
- [23]V. K. Kalevich, and V. L. Korenev, *JETP Lett.* **1993**, 57, 557.
- [24]R. Winkler, Spin-Orbit Coupling Effects in 2D Electron and Hole Systems, (*Springer* **2003**, Chap. 7.)
- [25]W. J. H. Leyland, R. T. Harley, M. Henini, A. J. Shields, I. Farrer and D. A. Ritchie, *Phys. Rev. B* **2007**, 76, 195305.
- [26]P. S. Eldridge, W. J. H. Leyland, P. G. Lagoudakis, R. T. Harley, R. T. Phillips, R. Winkler, M. Henini and D. Taylor, *Phys. Rev. B* **2010**, 82, 045317.
- [27]P. S. Eldridge, J. Hübner, S. Oertel, R. T. Harley, M. Henini and M. Oestreich, *Phys. Rev. B* **2011**, 83, 041301(R).
- [28]M. Oestreich, S. Hallstein and W. W. Rühle, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **1996**, 2, 747.
- [29]Yu. A. Nefyodov, A. V. Shechepetilnikov, I. V. Kukushkin, W. Dietsche and S. Schmult, *Phys. Rev. B* **2011**, 83, 041307(R).
- [30]T. Hiramoto, K. Hirakawa, Y. Iye and T. Ikoma, *Appl. Phys. Lett.* **1989**, 54, 2103.
- [31]C. Bäuerle, F. Mallet, F. Schopfer, D. Mailly, G. Eska and L. Saminadayar, *Phys. Rev. Lett.* **2005**, 95, 266805.
- [32]I. A. Yugova, A. Greilich, D. R. Yakovlev, A. A. Kiselev, M. Bayer, V. V. Petrov, Yu. K. Dolgikh, D. Reuter and A. D. Wieck, *Phys Rev B* **2007**, 75, 245302.

- [33] M. Oestreich and W. W. Rühle, *Phys. Rev. Lett.* **1995**, 74, 2315.
- [34] W. Zawadzki, P. Pfeffer, R. Bratschitsch, Z. Chen, S. T. Cundiff, B. N. Murdin and C. R. Pidgeon, *Phys Rev B* **2008**, 78, 245203.
- [35] J. Hübner, S. Döhrmann, D. Hägele, and M. Oestreich, *Phys Rev B* **2009**, 79, 193307.

第四章 (111) 取向 GaAs/AlGaAs 量子阱中自旋动力学的实验研究

4.1 (111) 取向量子阱的自旋弛豫机制及其特殊性

在以前的研究中,大部分工作都集中在[001]取向的样品体系。近年来,大家开始将注意力转移到一些特殊的晶向上,如[110]和[111]。早在 1986 年, Dyakonov 和 Kachorovskii 从理论上认识到,在[110]和[111]晶向生长的样品体系中,自旋性质会有一些有趣的现象[1]。

我们回顾一下 DP 自旋弛豫机制。对于 III-V 族半导体及其二维结构,由于空间对称性的缺失,会引入相应的自旋-轨道耦合项,导致自旋分裂。体反转不对称性 (BIA) 对应 Dresselhaus 自旋分裂项,结构反转不对称性 (SIA) 对应 Rashba 自旋分裂项。这些自旋分裂可以被等效地看成一个有效磁场,磁场的大小和方向依赖于电子波矢 $\vec{k}$ 。电子自旋围绕着有效磁场做拉莫进动,电子动量的散射导致进动的随机化,使得自旋有一定的几率重新取向,这就导致了自旋极化的弛豫过程。在 DP 机制下自旋弛豫时间可以简单写成: $\tau_s^{-1} \approx \langle \Omega^2 \rangle \tau^*$, 其中 $\langle \Omega^2 \rangle$ 是有效磁场的方均值, τ^* 是动量弛豫时间[1,2]。导带自旋分裂主要有两种贡献:体反转不对称性 (BIA 或者 Dresselhaus 项[3]), 结构反转不对称性 (SIA 或 Rashba 项[4])。SIA 可以通过外加电场的方式控制,因此原则上我们可以利用外加偏压或不对称掺杂等方式达到控制自旋弛豫的目的。通过电学方法控制电子自旋动力学对于开发自旋电子器件非常重要[5~7]。

在 GaAs 体材料中只有体反转不对称性,因此只有 Dresselhaus 项,其等效的有效磁场为[5,8]:

$$\vec{\Omega}_{BIA}^{3D}(\vec{k}) = \frac{\gamma}{\hbar} [k_x(k_y^2 - k_z^2), k_y(k_z^2 - k_x^2), k_z(k_x^2 - k_y^2)] \quad (4-1)$$

其中 $\vec{k} = (k_x, k_y, k_z)$ 为电子波矢, γ 为 Dresselhaus 系数。在量子阱中,由于沿着生长方向 z 的电子动量是量子化的,因此矢量 $\vec{\Omega}$ 变为:

$$\begin{aligned}
\vec{\Omega}_{BLA} &= \frac{\gamma}{\hbar} \langle k_z^2 \rangle (-k_x, k_y, 0) \quad z//[001]; \\
\vec{\Omega}_{BLA} &= \frac{\gamma}{2\hbar} \langle k_z^2 \rangle (0, 0, k_y) \quad z//[110]; \\
\vec{\Omega}_{BLA} &= \frac{2\gamma}{\sqrt{3}\hbar} \langle k_z^2 \rangle (k_y, -k_x, 0) \quad z//[111];
\end{aligned} \tag{4-2}$$

这里忽略了立方项，只考虑线性项。如果量子阱结构是不对称的，将会出现 Rashba 项：

$$\vec{\Omega}_{SLA} = \frac{\alpha}{\hbar} (k_y, -k_x, 0) \tag{4-3}$$

其中 $\alpha = \alpha_0 E$ 是 Rashba 系数， α_0 是一个正的常数， E 是电场强度。

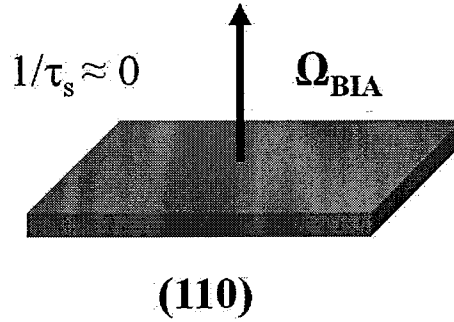


图 4.1 (110) 量子阱 Dresselhaus 项有效磁场 $\vec{\Omega}_{BLA}$ 取向示意图

在过去的几年，通过选择特殊的晶向及合适大小的 Rashba 和 Dresselhaus 项控制自旋弛豫已经有大量理论和实验工作[9~17]。(001)量子阱的情况已经在第三章做了详细描述，由于 Rashba 项和 Dresselhaus 项的干涉作用，面内[110]（或 $[1\bar{1}0]$ ）方向的自旋弛豫时间会变得非常长。而[110]方向生长的对称量子阱，只存在 Dresselhaus 项，其有效磁场沿着生长方向，如图 4.1 所示， z 方向的自旋不受 DP 机制影响，因此自旋寿命非常长。Ohno 等人[18]在实验上已经验证了这一点。他们在室温下测得 7.5nm (110) GaAs 量子阱中自旋弛豫时间有 2.1ns，而作为对比的 (100) 量子阱中自旋弛豫时间只有 70ps。由于长的自旋弛豫时间，(110) 取向的量子阱引起了广大研究者的极大兴趣[10,13,19,20]。对于 (001) 和 (110) 取向的量子阱，都只在某个特定方向消除 DP 机制影响，

其他自旋取向依然受 DP 机制作用[10,13,19]。对于 (111) 取向的量子阱，见式 (4-2) 和式 (4-3)，其特殊之处在于 Dresselhaus 有效磁场与 Rashba 有效磁场可以完全相互抵消，因此可以完全抑制 DP 机制，任意取向的自旋弛豫时间都将变得很长。

Cartoixa 等人[21]在 2005 年从理论上预言了这一结果。在 (111) 量子阱中，设定 z 轴沿着[111]方向， x 轴沿[11 $\bar{2}$]， y 轴沿[$\bar{1}$ 10]。导带电子的 Dresselhaus 一阶哈密顿量为[1,2,21]:

$$H_D = \beta(k_y\sigma_x - k_x\sigma_y) \quad (4-4)$$

其中 $\sigma_i (i = x, y, z)$ 是 Pauli 自旋矩阵， $\beta = \frac{2\gamma\langle k_z^2 \rangle}{\sqrt{3}}$ ， γ 是量子阱的 Dresselhaus 系数， $\langle k_z^2 \rangle$ 是生长方向电子动量的方均值（正比于电子束缚能）。当沿着生长方向外加一个电场，会引入有效的 Rashba 项，其哈密顿形式跟 Dresselhaus 线性项一致 [21~23]:

$$H_R = \alpha(k_y\sigma_x - k_x\sigma_y) \quad (4-5)$$

其中 $\alpha = \alpha_0 E$ 是 Rashba 系数， E 是外加电场。将 (4-4) 和 (4-5) 两式加起来得到 (111) 量子阱中总的自旋-轨道耦合产生的哈密顿量:

$$H = (\alpha + \beta)(k_y\sigma_x - k_x\sigma_y) \quad (4-6)$$

当 $\alpha = -\beta$ 时，导带自旋分裂消失，DP 自旋弛豫机制在 x, y, z 三个方向都被抑制。

Vurgaftman 和 Meyer[22]在 (111) InGaAs 量子阱中也研究了这种现象。(111) 取向量子阱的独特性质吸引了大家的注意[21~25]。

实验上 Marie 小组[24]首先取得突破，如图 4.2 所示[24]，他们在 (111) 取向 NIP 结构中外加反向偏压，极大地延长了多量子阱中电子自旋的弛豫时间， $T=50K$ ，外加电场为 50kV/cm 时，利用时间和偏振分辨的荧光光谱技术测得，自旋弛豫时间超过 30ns。同时他们在外加磁场辅助下，测得面内自旋弛豫时间，也被外加电场极大延长，与生长方向自旋弛豫时间基本一样。这些结果是对 DP 理论很好的验证。

与 Marie 小组合作, 我们也同时开展了 (111) 这个特殊方向生长的 GaAs 材料体系自旋动力学的研究。我们通过能带工程设计不对称量子阱以及外加门电压的方式, 控制 Rashba 项的大小和方向, 从而实现抵消 Dresselhaus 项的目的。

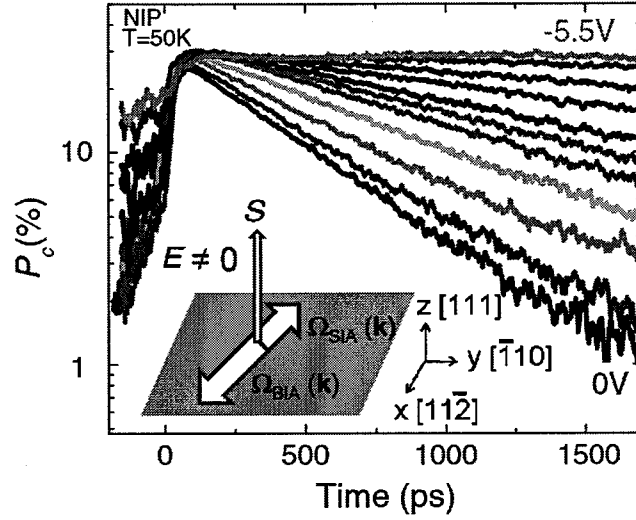


图 4.2 不同偏压下的自旋弛豫过程 $T=50\text{K}$ 。

4.2 量子阱生长方向依赖的电子自旋动力学

4.2.1 样品的结构和制备

我们这里研究了 4 块样品, 都是分子束外延生长的。一块 NIP (PIN) 生长在 (111) B 衬底上, 一块 NIP (PIN) 生长在 (111) A 衬底上。(111) B 衬底晶向相对于 $\langle 111 \rangle$ A 有 3° 偏离, (111) A 衬底晶向为 $(111) A \pm 0.5^\circ$ 。NIP 的具体结构如下: 衬底 / 200nm GaAs 缓冲层 / 500nm p-doped ($p=1.2e^{18}\text{cm}^{-3}$) GaAs / 100nm AlGaAs 势垒层/MQW/70nm AlGaAs 势垒层 / 10nm n-doped ($n=2.8e^{18}\text{cm}^{-3}$) AlGaAs。如图 4.3(a)(b)为两块 NIP 样品的结构示意图。MQW 层是 20 周期多量子阱结构, 其中 (111) B 样品量子阱宽度 $L_W=15\text{nm}$, 势垒宽度 $L_B=12\text{nm}$, (111) A 样品量子阱宽度为 $L_W=12\text{nm}$ 势垒宽度 $L_B=30\text{nm}$, 势垒铝组分都是 0.3。PIN 样品的结构和 NIP 样品类似, 只是 N 型层跟 P 型层交换了顺序。

门电压加在 N 型 AlGaAs 层和 P 型 AlGaAs 层上。对于 (111) B 样品, 首

先使用湿法刻蚀的方式使 P 型层暴露出来，然后在 N 型层和 P 型层点上银胶，形成欧姆接触，最后用金线引出电极。对于 (111) A 样品，也用湿法刻蚀将 P 型层暴露出来，然后蒸镀上金形成欧姆接触，最后用压焊机引出电极。

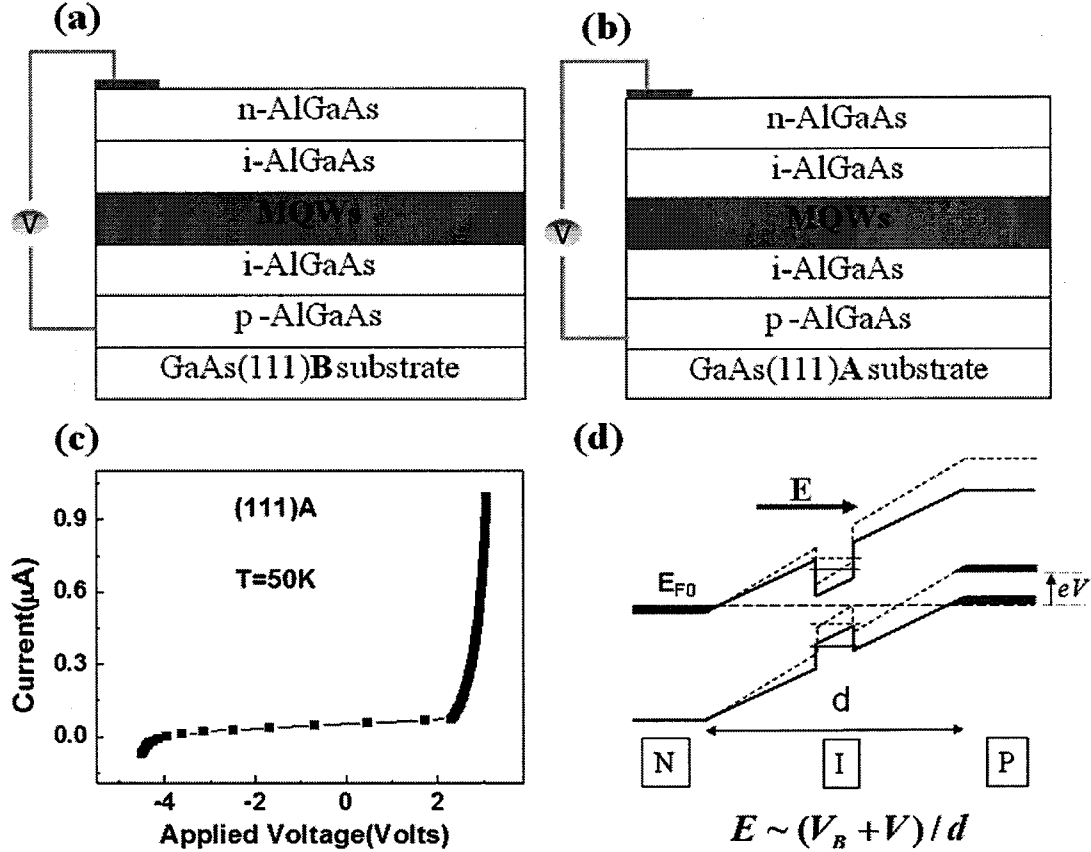


图 4.3 NIP GaAs/AlGaAs 多量子阱结构示意图，(a) 衬底为 (111) B，(b) 衬底为 (111) A。(c) (111)A 衬底生长的 NIP 结构 I-V 特性，温度 $T=50\text{K}$ 。(d) NIP 器件在电场 $E \sim (V_B + V)/d$ 下的能带结构图，其中 V_B 是内建电场， V 是外加偏压。

4.2.2 实验配置以及样品的电学、光学性质

时间分辨克尔旋转测量配置，跟 3.2.2 节中的基本一样，不同的是，在这个实验研究中，样品被放置在牛津公司的一个比较小的低温恒温器中，温度 $3.2\text{K} \sim 500\text{K}$ 可控。作为补充，合作组进行了时间和极化分辨的光致荧光光谱实验，激发光采用圆偏振的皮秒激光脉冲，探测使用的是时间分辨率为 8ps 的条纹相机 (streak camera) [26]。这里的实验主要都在 $T=50\text{K}$ 时进行，在更高的温度 100K ， 150K 也进行了相应的测试，可以得到跟 $T=50\text{K}$ 非常类似的结果。

在进行克尔测量之前，先对 NIP 器件的电学和光学特性进行测试。我们使

用的是 Keithley 的 2400 源表, 在对样品施加电压的同时, 观测电流变化情况。图 4.3(c) 是 $T=50\text{K}$ 时, (111)A 衬底生长的 NIP 器件的 I-V 特性曲线。这是 NIP 结构典型的 I-V 曲线, 表明电极与样品间形成良好的欧姆接触。与此同时我们测量了不同偏压下的 PL 光谱, 由于量子限制 stark 效应(Quantum Confined Stark Effect, QCSE)[27~29], PL 光谱中心波长会产生红移, 偏移的多少跟加到量子阱上的电场强度相关。图 4.4 为不同偏压下 (111) B 样品在 50K 下的 PL 谱, 插图中显示 PL 中心波长随外加偏压的改变。从图 4.4 中我们也可以发现, 随着外加偏压的增加, PL 强度也在改变, 这是由于在反向偏压下 PIN 结中电子能带进一步倾斜, 并且使得电子和空穴波函数产生一定空间的分离, 导致辐射复合效率降低。

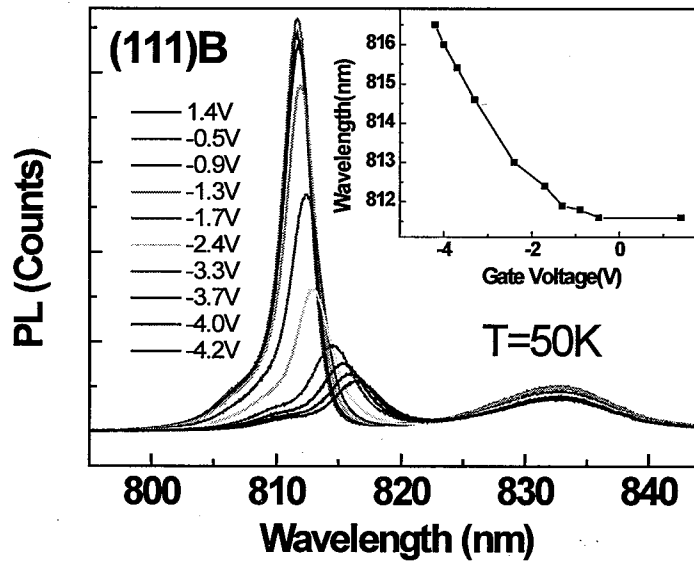


图 4.4 NIP (111) B 衬底样品不同门电压下 PL 光谱的 stark 位移, $T=50\text{K}$ 。插图为 PL 中心波长随外加门电压的关系。

在外加偏压下, 量子阱感受到的电场由两部分组成, 一部分是 PN 结形成的内建电场, 另一部分是外加电压形成的外加电场, 因此总电场 $E \sim \frac{V_B + V}{d}$, 图 4.3 (d) 为 PN 结在反向偏压下的电子能带示意图。反向电压 (即 N 指向 P) 会抬高 P 型层中的费米面, 使得横跨 PN 结的总静电势增加, 因此多量子阱区域感受到的总电场增加, 即此时外加电场跟内建电场同向, 两者叠加。反之当加的是正向电场 (P 指向 N), 外加电场将抵消一部分内建电场, 使多量子阱区

域感受到的总电场减小，当外加正向电场足够强的时候电子能带就被拉平了，此时多量子阱中的总电场为 0。

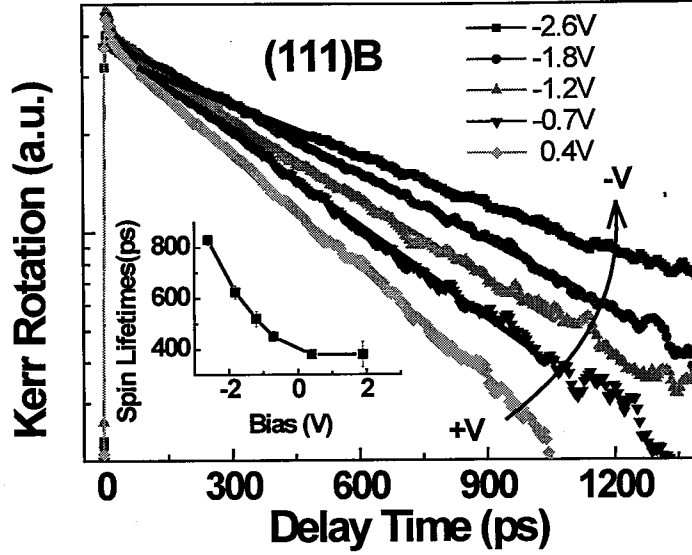


图 4.5 NIP (111) B 衬底样品不同门电压下的克尔信号， $T=50\text{K}$ 。随着 NIP 结构反向电压的增大，自旋弛豫越来越慢。插图为自旋寿命与门电压的关系。

4.2.3 自旋寿命的电场操控

图 4.5 为 NIP (111) B 样品在不同外加偏压下的时间分辨克尔信号，温度 $T=50\text{K}$ 。电子自旋寿命 T_s 可以在自然对数坐标下通过线性拟合得到，见图中的实线。当反向偏压增大时，自旋寿命 T_s 显著增加，电压从 $+0.4\text{V}$ 到 -2.6V 时， T_s 从 380ps 增加到 830ps 。通过 TRKR 测量得到的自旋寿命依赖于电子自旋弛豫时间 τ_s 和载流子寿命 τ_r ： $\frac{1}{T_s} = \frac{1}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_r}$ 。利用时间分辨光致荧光测得载流子寿命

τ_r ，我们可以计算出电子自旋弛豫时间（比如在 $V=-2.9\text{V}$ 时 $\tau_r \sim 3200\text{ps}$ 可以得出 $\tau_s \sim 1200\text{ps}$ ，这与 Marie 小组他们在相同电压下的实验结果一致[24]）。自旋寿命 T_s 的显著增加主要是自旋弛豫时间 τ_s 极大延长的结果，而自旋弛豫时间延长是由于 Rashba 和 Dresselhaus 相互抵消，造成导带电子自旋分裂减小，抑制

了 DP 自旋弛豫机制。

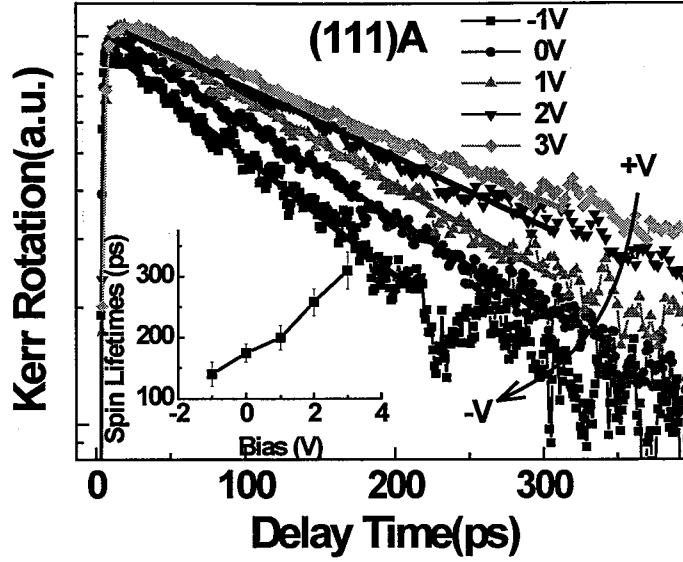


图 4.6 NIP (111) A 衬底样品不同门电压下的克尔信号, $T=50\text{K}$ 。随着 NIP 结构反向电压的增大, 自旋弛豫变快。插图为自旋寿命与门电压的关系。

图 4.6 是在 NIP (111) A 样品上进行相同实验的结果。有意思的是, 当加反向偏压时, 电子自旋寿命显著减小, 这跟 NIP (111) B 衬底样品的结果刚好相反。外加电压从 +3V 到 -1V 时, 电子自旋寿命 T_s 从 310ps 减小到 140ps, 见图 4.6 中插图。此结果在时间-偏振分辨的光致荧光光谱实验中得到确认, 如图 4.7 所示, 自旋弛豫时间 τ_s 随着外加偏压从 +2V 到 -5V 急剧减小。

从 I-V 曲线 (图 4.3 (c)) 可以看出, 在 $V \sim +3\text{V}$ 左右, 即使再增加电流, NIP 结上的压降也不能增加了, 因此对应的电子能带几乎被拉平, 外加电场和内建电场相互抵消, 此时多量子阱 (MQW) 中感受到的总电场几乎为 0, Rashba 项为 0, 量子阱中导带自旋分裂项只有 Dresselhaus 项。其他偏压下, 多量子阱区域的电场强度可以根据量子限制 Stark 效应 (QCSE) 产生的光谱偏移量得出, 图 4.7 中插图 of 光谱中心能量对应外加偏压改变的情况, $V = -3\text{V}$, 光谱相对于总电场为 0 的情形产生了 14meV 的红移, 此时对应在多量子阱中的总电场强度为 $|E| \sim 70 \text{ KV/cm}$ 。

我们注意到在总电场为 0 时 (111)A 样品 ($V \sim +2$) 的自旋寿命 $T_s \sim 260\text{ps}$ ，相比 (111) B 样品 ($T_s \sim 400\text{ps}$) 要短许多。其实两块样品的自旋寿命并不能直接进行比较，这是由于这两块样品的量子阱宽度不同，(111) B 样品量子阱宽 $L_w=15\text{nm}$ ，(111) A 样品量子阱宽 $L_w=12\text{nm}$ 。Dresselhaus 项大小正比于 $\langle k_z^2 \rangle \approx (\pi/L_w)^2$ ，在 $L_w=12\text{nm}$ 的量子阱中要比在 $L_w=15\text{nm}$ 的量子阱中要大 50%。一方面这将导致总电场强度为 0 时自旋寿命更短，另一方面更强的 Dresselhaus 项将需要更大的 Rashba 项（或电场强度）来抵消它。因此对于 (111) A 样品，要通过外加电场引起的 Rashba 项来抵消 Dresselhaus 项，获得长的自旋寿命将比 (111) B 样品更加困难。

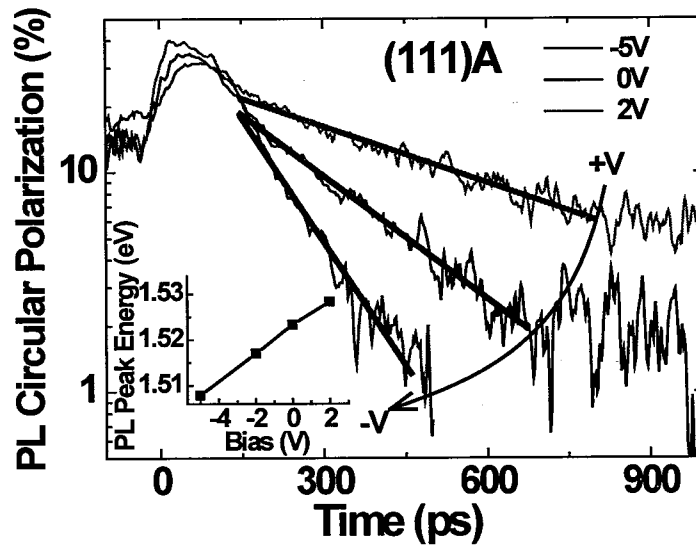


图 4.7 NIP(111)A 衬底样品不同门电压下的时间-偏振分辨荧光光谱, $T=50\text{K}$ 。随着 NIP 结构反向电压的增大，自旋弛豫变快。插图为 PL 谱中心波长对应能量与门电压的关系。

根据理论计算[21]，随着 Rashba 项增强，抵消 Dresselhaus 项，电子自旋寿命急剧增加，当两者完全相互抵消的时候出现峰值，此时导带自旋分裂消失，DP 机制完全被抑制；如果进一步增大 Rashba 项，自旋寿命又会快速减小，此时导带自旋分裂由剩余的 Rashba 项决定。这种现象在我们的实验中并没有被观

察到，这是由于受到 NIP 器件电学性质的限制，我们不能施加足够强的电场引入足够大的 Rashba 项。

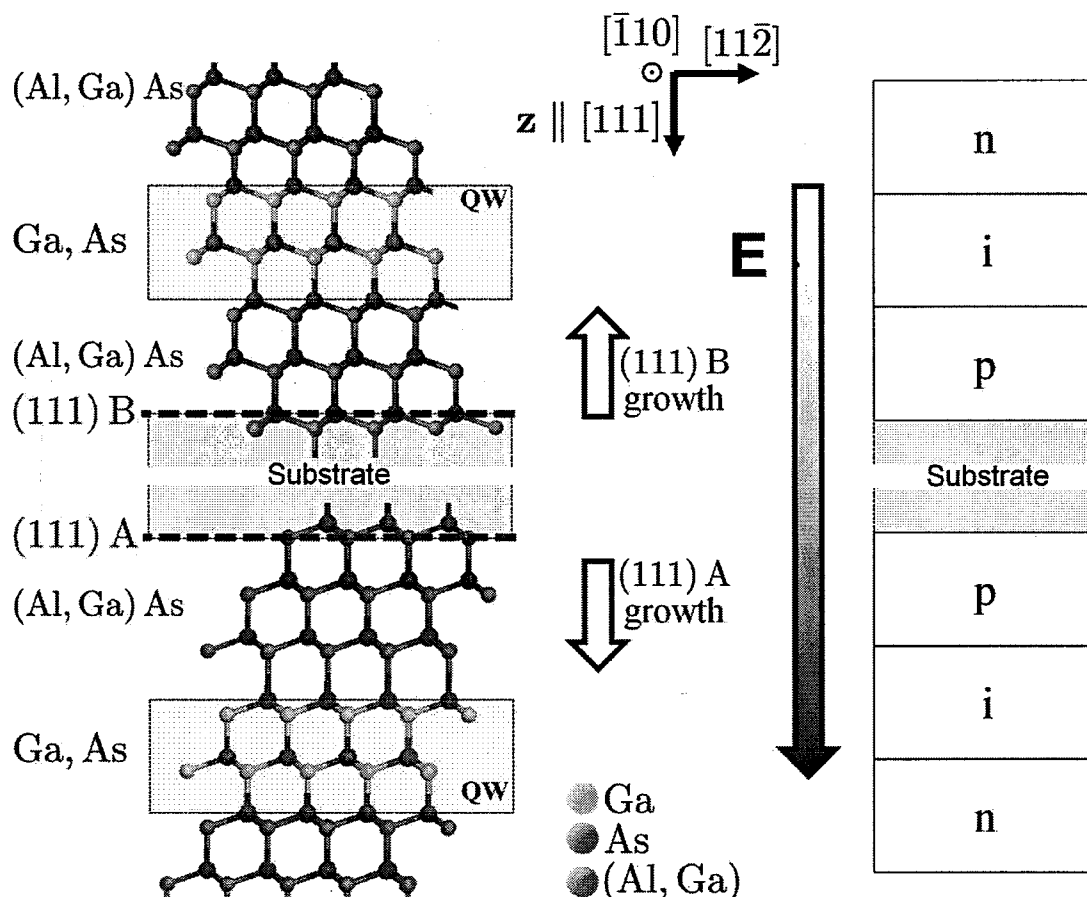


图 4.8 衬底为 (111) A 和 (111) B 的 NIP 样品晶体结构示意图。这里外加电场 E 指向使自旋寿命增加的方向。

4.2.4 生长方向对自旋动力学的影响

从上面的分析我们注意到，在不同方向生长的样品中，都可以通过外加电场的方式使自旋寿命极大地延长，但是，有趣的是为了使自旋寿命延长，在 (111) A 衬底的 NIP 结构中需要外加电场的方向沿着生长方向（P 型层指向 N 型层），而在 (111) B 衬底的 NIP 结构中需要外加电场的方向跟生长方向相反（N 型层指向 P 型层）。这是由 Rashba 和 Dresselhaus 项相对符号所决定的。如图 4.8 所示，我们设定 z 轴正方向指向晶向 $[111]$ ，并维持不变，来分析两种衬底生长的 NIP 结构。对于 (111) B- NIP 结构，使自旋寿命延长的外加电压是反向电压，即 N 型层指向 P 型层，因此多量子阱感受到电场 E 跟生长方向相反，是指向 z

轴正方向的。对于 (111) A-NIP 结构, 使自旋寿命延长的外加电压是正向的, 即 P 型层指向 N 型层, 此时多量子阱感受到的电场 $\mathbf{E}$ 沿着生长方向, 还是指向 z 轴正方向。综上所述, 从 NIP (PIN) 器件角度来看, 为延长 (111) A 和 (111) B 样品所需的电场方向是相反的; 但从晶格坐标系来看, 电场方向其实是一致的。

为了更好地证明这一点, 我们还研究了在 (111) A 和 (111) B 衬底上生长的 PIN 结构。在这种结构中, 同样加反向偏压时, 实际电场方向跟 NIP 结构中相反。跟预期的一样, 在 (111) B-PIN 中, 自旋寿命随反向偏压增大而减小; 在 (111) A-PIN 中, 自旋寿命随反向偏压增大而延长。实验数据这里没有给出。

在 GaAs 量子阱中, 如果不存在外加电场, 导带自旋分裂项除了 Dresselhaus 项, 还可能存在另外一项——由于化学键在量子阱表面各向异性造成的界面反转不对称 (interface inversion asymmetry, IIA) 项[5,7,8], IIA 项具有跟 Dresselhaus 项类似的形式[7]。IIA 项对于解释试验中观察到的现象也是有一定贡献的, 当然 Rashba 项的贡献应该是主要的。在我们 (111) A 和 (111) B 样品中, 通过外加电场减小导带自旋分裂延长自旋寿命的实验中, 并不能很好地区分 IIA 和 Rashba 项的贡献, 这还需要更详细的计算和实验。关于 IIA 项在 4.3.3 节还会讨论到。

此结果已经提交到 Applied Physics Letters, 正在审稿中。

4.3 (111) 取向不对称量子阱 (单边倾斜势垒)

4.3.1 样品的结构和光谱性质

根据能带结构工程, 我们设计了一对不对称量子阱 (单边倾斜势垒), 如图 4.9 所示。样品用 MBE 生长在 (111) A 半绝缘 GaAs 衬底上。样品 A 的倾斜势垒在衬底方向, 具体结构是: 衬底/500nm GaAs 缓冲层/300nm AlGaAs 势垒层/9nm 铝组分渐变区/8nm GaAs 量子阱/100nm AlGaAs 势垒层/1nm GaAs 盖层。其中势垒层 Al 组分为 0.28, 渐变层铝组分从 0.28 到 0.04 均匀变化。样品 B 具有跟样品 A 类似的结构, 但渐变势垒层是在量子阱上方。

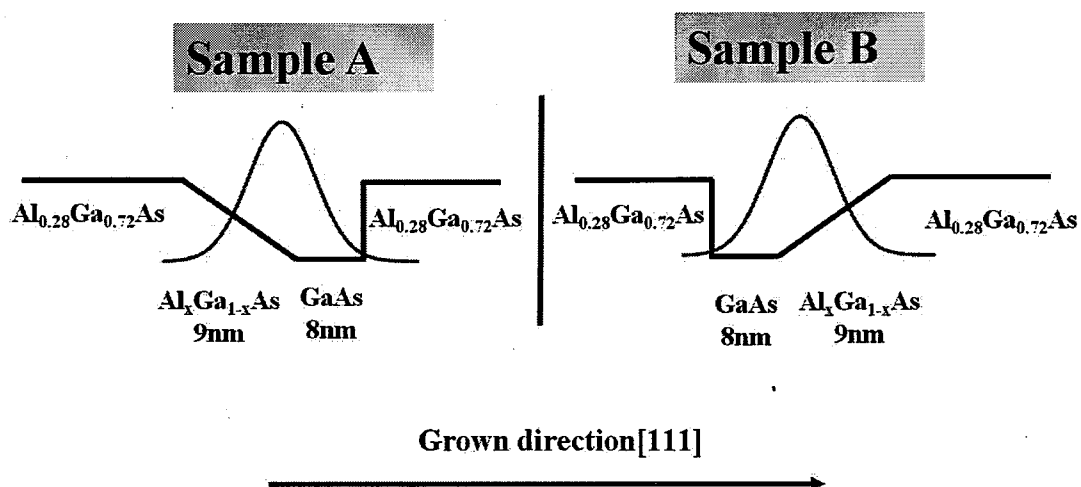


图 4.9 (111) 倾斜势垒不对称量子阱示意图。样品 A 为量子阱下方势垒倾斜，样品 B 为量子阱上方势垒倾斜。

在进行克尔测量前，我们用 PL 谱来表征量子阱质量。图 4.10 为 $T=75\text{K}$ 时样品 A 与样品 B 归一化的 PL 光谱，可以看出两块样品的发光性质基本一致，中心波长为 $\sim 802\text{nm}$ ，半宽高 $\sim 10\text{nm}$ 左右。在其他温度 ($3.2\text{K}\sim 300\text{K}$)，两块样品的 PL 性质也非常接近。从低温到高温 ($3.2\text{K}\sim 300\text{K}$) PL 中心波长从 799nm 到 842nm 。从 PL 谱来看，样品 A 和样品 B 的质量非常类似，有利于我们进行对比试验。

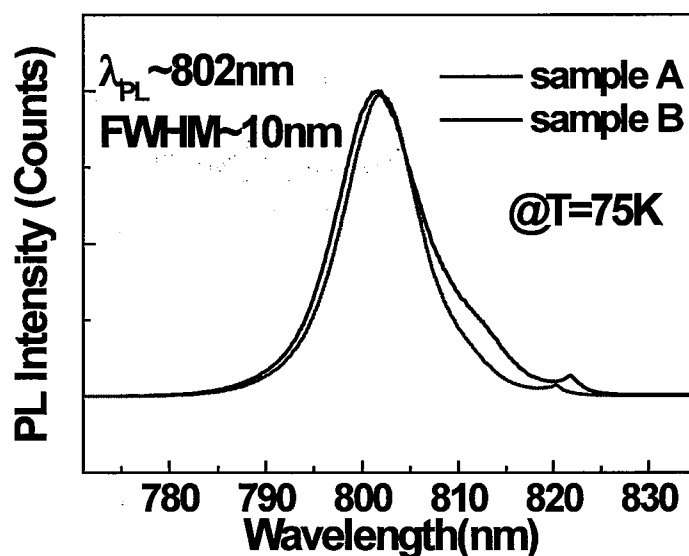


图 4.10 样品 A 和样品 B 在 75K 时的 PL 谱比较。

4.3.2 (111) 取向不对称量子阱中的自旋动力学

图 4.11 为 $T=75\text{K}$ 时样品 A 和样品 B 的自旋弛豫过程，样品 B 中的自旋寿命要比样品 A 中的自旋寿命长很多。通过拟合可以得到 $\tau_{sA}=185\text{ps}$ ， $\tau_{sB}=270\text{ps}$ 。由于除了不对称势垒倾斜方向相反外，两块样品的结构和光谱性质基本都一样，因此我们认为这种自旋寿命的分离是倾斜势垒造成的。我们观察了两块样品自旋寿命的温度依赖关系（从 30K 到 300K），如图 4.12 所示。两块样品的自旋寿命随着温度的升高都减小，并且 τ_{sA} 和 τ_{sB} 的差别也越来越小，到 100K 以上，就基本相同了，这在图 4.11 插图中也可以看到。

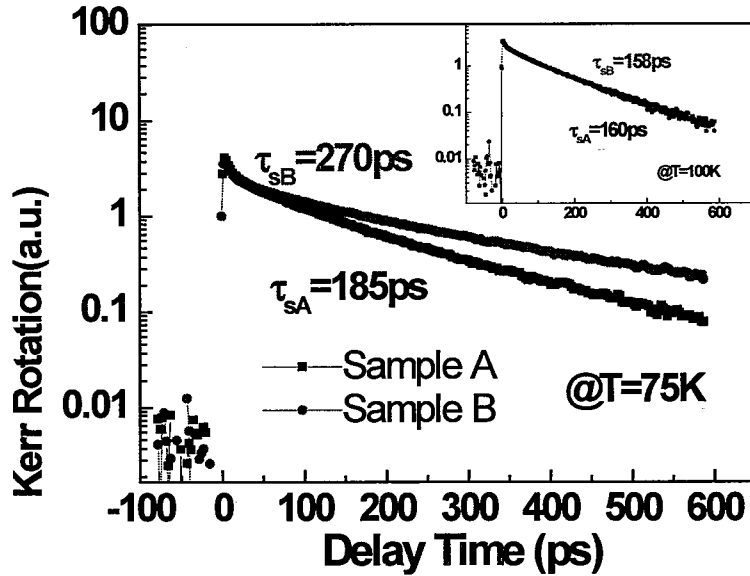


图 4.11 样品 A 和样品 B 在 $T=75\text{K}$ 时的克尔信号。插图中 $T=100\text{K}$ 。

4.3.3 (111) 取向不对称量子阱中的自旋弛豫机制

通常来说量子阱结构不对称认为会引入 Rashba 自旋-轨道耦合项。然而根据我们第三章中 (001) 取向不对称量子阱的实验结果[30]，以及最近其他一些实验报道[14,15]表明，铝组分渐变形式引入的倾斜势垒不能引入有效的 Rashba 项。根据 Winkler[31,32]的理论分析也认为由结构反演不对称引起的 Rashba 项与组分变化关系不大。根据 Lassing 理论[33]，Rashba 自旋分裂项主要取决于

价带平均电场： $\langle c|\varepsilon_v|c\rangle$ 。由于要满足 Ehrenfest 理论，在量子阱中导带平均电场必须为零： $\langle c|\varepsilon_c|c\rangle=0$ ；而由于 GaAs/AlGaAs 具有同形结构 (isomorphous)，如图 4.13 右边所示，价带电场在两个边界能相互抵消，价带平均电场： $\langle c|\varepsilon_v|c\rangle=0$ [14,15]。因此在 GaAs/AlGaAs 量子阱中合金组分改变引起的限制势垒梯度电场不能引入有效的 Rashba 项。

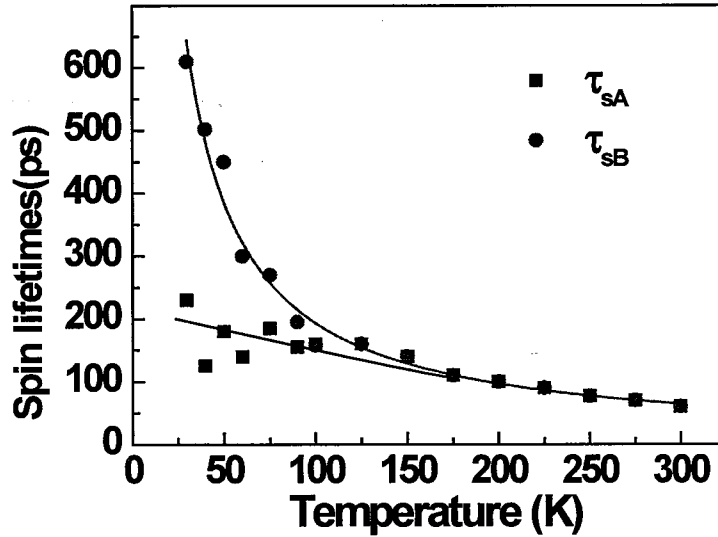


图 4.12 样品 A 和样品 B 自旋寿命 τ_{sA} 和 τ_{sB} 随温度的依赖关系。

那么我们在 (111) 取向具有相反势垒倾斜方向的量子阱中观察到的自旋寿命的分离是什么引起的呢？在 DP 机制下，自旋弛豫依赖于导带自旋分裂和动量弛豫时间。而通常认为导带自旋分裂主要有两项：Dresselhaus（或 BIA）和 Rashba（或 SIA）项。事实上由于量子阱界面化学键各向异性造成的界面反转不对称（interface inversion asymmetry, IIA）性[5,31,34, 35]也对导带自旋分裂有贡献。IIA 项最早被 Krebs 和 Voisin[36]注意到，在后来光学吸收各向异性的实验中被证实[37,38]。Hall 等人[39]用时间分辨圆偏振透射实验研究 InGa/GaSb 超晶格样品，给出了尤其清晰的证明。不过对于 GaAs/AlGaAs 材料通常认为没有这一效应[36,40]，这是由于在这类材料量子阱结构中，势垒层和量子阱层界面处共享同一种原子，量子阱上下界面是对称的。图 4.14 左边为 (001)

GaAs/AlGaAs 量子阱的晶体结构示意图, 显而易见在量子阱的上下界面是对称的, 在这种情况下没有自然界面不对称性, 这也是通常所认为的情况。然而对于 (111) 量子阱情形有所不同, 如图 4.14 右边所示, 量子阱界面跟势垒层界面虽然共享同一种原子, 但由于 (111) 表面极性, 上下界面是不对称的。也就是说 (111) 方向生长的量子阱即使是对称生长的, 严格地说也不是对称的。因此在 (111) GaAs/AlGaAs 中 IIA 项应该被考虑在内。而 IIA 自旋分裂项的哈密顿量线性依赖于 $\vec{k}$, 形式跟 Dresselhaus 项哈密顿量一致[35]。如果 IIA 项符号跟 Dresselhaus 项符号相反, 则能抵消掉一部分 Dresselhaus 项, 那么自旋寿命就会被极大地延长。

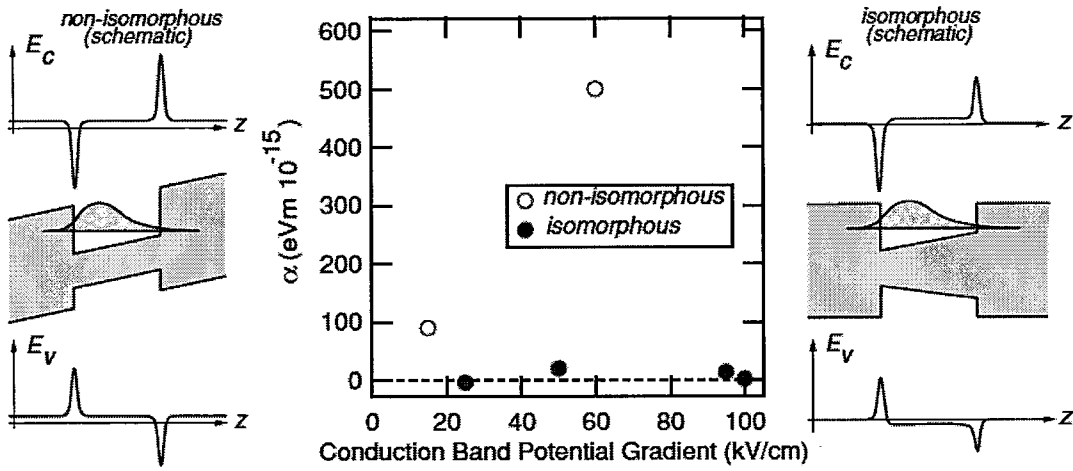


图 4.13 同形 (isomorphous): 右图, 和异形 (no-isomorphous): 左图情况下不对称量子阱的能带示意图, 以及其中 Rashba 系数对导带限制势梯度电场的依赖关系: 中间。

在我们设计的倾斜势垒不对称量子阱, 如图 4.7 所示, 由于量子阱其中一个边界的势垒倾斜使得量子阱中的电子波函数不在量子阱中心, 而是更靠近倾斜势垒的边界, 而势垒倾斜在不同的边界导致电子波函数感受到的 IIA 项不同。那么不同的 IIA 项与 Dresselhaus 项相互作用, 就造成了自旋寿命的差异。

如 3.1.1 节所描述的, Dresselhaus 项还存在立方项, 并且随着温度的升高这一项会变得越来越重要, 在满足一定条件的时候立方项将会占据主导作用。造成的结果是, 随着温度的升高, 由线性项之间相互抵消作用造成的自旋寿命延长效应将变得越来越不明显; 当立方项占据主导作用时, 这种效应就不再能

被观察到。这就解释了实验中观察到两块样品自旋寿命的分离为什么随温度升高而逐渐减小。

此结果已整理成文章，提交到 Chinese Physics Letters。

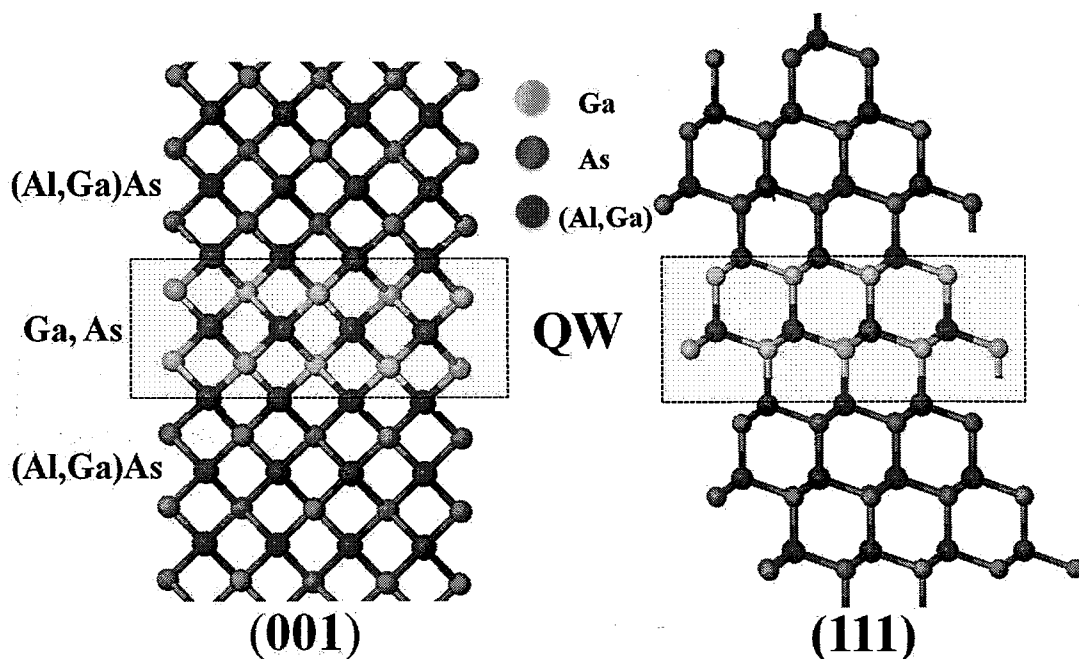


图 4.14 (001) (111) GaAs/AlGaAs 量子阱晶体结构示意图。(001) 量子阱上下界面对称，不存在自然界面不对称性。而 (111) 量子阱界面虽然贡献同一原子，由于 (111) 表面的极性，“对称”量子阱实际上是不对称的。

4.4 本章小结

本章介绍了 (111) 方向生长的 GaAs/AlGaAs 量子阱中电子自旋动力学的控制。

利用外加电场的方式能够极大延长 (111) 取向多量子阱中的自旋寿命，并在实验过程中发现对于 (111) A 衬底和 (111) B 衬底生长的样品，为了延长自旋寿命所需要的外加电场方向相反。这是由 Rashba 项和 Dresselhaus 项相对符号决定的，从晶格坐标系来看这两种情形实际是一样的。此结果已经提交到 Applied Physics Letters，正在审稿中。

我们研究了一对由铝组分渐变引入倾斜势垒的 (111) GaAs/AlGaAs 不对称量子阱，发现了两块样品的自旋寿命在低温下很大的偏离。这种自旋寿命的

分离是由界面反转不对称项和 Dresselhaus 项相互作用的结果。而两块样品自旋寿命的差异随着温度升高将会变得越来越小，是 Dresselhaus 立方项作用的结果。此结果已经提交到 Chinese Physics Letters，正在审稿中。

这两个研究结果都有很高的应用价值，对实际制备（111）方向生长的二维结构自旋电子器件提供很重要的参考。

参考文献

- [1] M. I. D'yakonov and V. Yu. Kachorovskii, *Sov. Phys. Semicond.* **1986**, 20, 110.
- [2] M. I. D'yakonov, V. I. Perel, *Sov. Phys. Solid State* **1972**, 13, 3023.
- [3] G. Dresselhaus, *Phys. Rev* **1955**, 100, 580.
- [4] Y.A. Bychkov, E.I. Rashba, *J. Phys. C* **1984**, 17, 6039.
- [5] M. Dyakonov, *Spin Physics in Semiconductors* (Springer, New York, **2008**)
- [6] M. W. Wu, J. H. Jiang, and M. Q. Weng, *Phys. Rep.* **2010**, 493, 61.
- [7] E.L. Ivchenko, *Optical Spectroscopy of Semiconductor Nanostructures* (Alpha Science, Harrow, **2005**)
- [8] M. I. D'yakonov (主编), 姬扬 (译), 《半导体中的自旋物理学》科学出版社 **2010** 年 7 月第一版。
- [9] N.S. Averkiev, L.E. Golub, *Phys. Rev. B* **60**, 15582 (1999)
- [10] W. H. Lau and M. E. Flatté, *J. Appl. Phys.* **2002**, 91, 8682.
- [11] V. Lechner, L. E. Golub, P. Olbrich, S. Stachel, D. Schuh, W. Wegscheider, V. V. Belachkov, S. D. Ganichev, *Appl. Phys. Lett.* **2009**, 94, 242109.
- [12] A. V. Larionov and L. E. Golub, *Phys. Rev. B* **2008**, 78, 033302.
- [13] O. Z. Karimov, G. H. John, R.T. Harley, W. H. Lau, M. E. Flatté, M. Henini, R. Airey, *Phys. Rev. Lett.* **2003**, 91, 246601
- [14] P. S. Eldridge, W. J. H. Leyland, P. G. Lagoudakis, R. T. Harley, R. T. Phillips, R. Winkler, M. Henini, and D. Taylor, *Phys. Rev B* **2010**, **82**, 45317.
- [15] P. S. Eldridge, J. Hübner, S. Oertel, R. T. Harley, M. Henini, and M. Oestreich, *Phys. Rev. B* **2011**, 83, 041301(R).
- [16] J. B. Miller, D. M. Zumbühl, C. M. Marcus, Y. B. Lyanda-Geller, D. Goldhaber-Gordon, K. Campman, A.C. Gossard, *Phys. Rev. Lett* **2003**, 90, 076807.
- [17] V.V. Bel'kov, P. Olbrich, S.A. Tarasenko, D. Schuh, W. Wegscheider, T. Korn, C. Schüller, D. Weis, W. Prettl, S.D. Ganichev, *Phys. Rev. Lett.* **2008**, 100, 176 806 .

- [18]Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi, F. Matsukura and H. Ohno, *Phys. Rev. Lett.* **1999**, 83, 4196.
- [19]S. Döhrmann, D. Hägele, J. Rudolph, M. Bichler, D. Schuh and M. Oestreich, *Phys. Rev. Lett.* **2004**, 93, 147405.
- [20]K. Morita, H. Sanada, S. Matsuzaka, C. Y. Hu, Y. Ohno and H. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* **2005**, 87, 171905.
- [21]X. Cartoixa, D. Z.-Y. Ting and Y.-C. Chang, *Phys. Rev. B* **2005**, 71, 045313.
- [22]I. Vurgaftman and J. R. Meyer, *J. Appl. Phys.* **2005**, 97, 053707.
- [23]B. Y. Sun, P. Zhang and M. W. Wu, *J. Appl. Phys.* **2010**, 108, 093709.
- [24]A. Balocchi, Q. H. Duong, P. Renucci, B. L. Liu, C. Fontaine, T. Amand, D. Lagarde and X. Marie, *Phys. Rev. Lett.* **2011**, 107, 136604.
- [25]W. Yang and K. Chang, *Phys. Rev. B* **2006**, 74, 193314.
- [26]P.-F. Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, T. Amand, P. Renucci, V. Kalevich, K. Kavokin, O. Krebs, P. Voisin, and M. Masumoto, *Phys. Rev. Lett.* **2005**, 94, 116601.
- [27]R. L. Tober and T. B. Bahder, *Appl. Phys. Lett.* **1993**, 63, 2369.
- [28]A. Vinattieri, J. Shah, T. C. Damen, K. W. Goossen, L. N. Pfeiffer, M. Z. Maialle and L. J. Sham, *Appl. Phys. Lett.* **1993**, 63, 3164.
- [29]R.L. Tober, T.B. Bahder, *Appl. Phys. Lett.* **1993**, 63, 2369.
- [30]Huiqi Ye, Changcheng Hu, Gang Wang, Rongyan Chen, Hongming Zhao, Haitao Tian, Wenxin Wang, and Baoli Liu, *Nanoscale Research Letters*, **2011**, 6, 520.
- [31]R. Winkler, *Spin Orbit Coupling Effects in Two-dimensional Electron and Hole Systems*, (Springer Tracts in Modern Physics **2003**, vol.191)
- [32]R. Winkler, *Physica E* **2004**, 22, 450.
- [33]R. Lassning, *Phys. Rev. B* **1985**, 31, 8076.
- [34]J. Fabian, A. Matos-Abiague, C. Ertler, P. Stano, I. Zutic, *Acta Physica Slovaca* **2007**, 57, 565.

- [35]U. Rössler, J. Kainz, **2002** *Solid State Communications* 121, 313.
- [36]O. Krebs, and P. Voisin, **1996** *Phys. Rev. Lett.* 77, 1829.
- [37]H. W. van Kesteren, E. C. Cosman, W. A. J. A. van der Poel, **1990**, *Phys. Rev. B* 41, 5283.
- [38]B. Koopmans, P. V. Santos, and M. Cardona, **1998**, *Phys. Stat. Sol.(a)* 170,307.
- [39]K. C. Hall, K. Gündoğdu, E. Altunkaya, W. H. Lau, M. E. Flatté, and T. F. Boggess, **2003** *Phys. Rev. B* 68, 115311.
- [40]R. Magri, and A. Zunger, **2000**, *Phys. Rev. B* 62, 10364.

第五章 立方相 GaN 自旋动力学的实验研究

5.1 立方相 GaN 的优越性

我们在第三、四两章的工作都集中在 GaAs 体系中，核心思想就是利用能带结构工程和外加电场等方式控制自旋-轨道耦合相互作用，实现操控半导体中自旋动力学过程。目前国际上这个领域的大部分工作也都在 GaAs 体系完成。大家也在不断探索一些新的更加适合研究自旋电子学的材料。

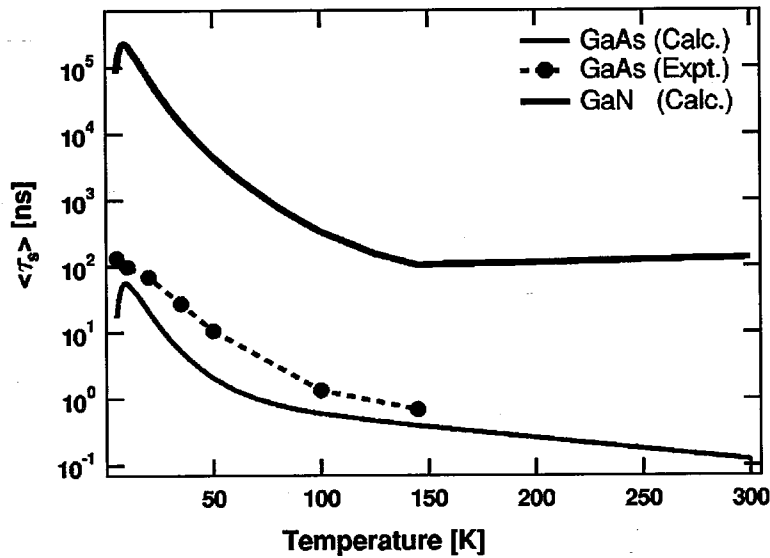


图 5.1 GaAs 和立方 GaN 自旋寿命随温度的依赖关系。

GaN 因为具有优异的光学特性及稳定的物理性质，是很好的宽带隙光电子材料，一直以来备受科学工作者瞩目，被广泛用于制备光电器件[1,2]和高频高功率电子器件[3]。在自旋电子学领域，GaN 也具有很广阔的应用前景。一方面，GaN 材料中自旋-轨道耦合非常弱，有可能获得长的自旋寿命。2003 年，Krishnamurthy 等人在理论上预言，室温下立方相 GaN 自旋寿命也非常长[4]，图 5.1 为其根据 DP 理论得到的立方相 GaN 自旋寿命随温度的依赖关系，可以看到立方相 GaN 的自旋寿命比 GaAs 要长 3 个数量级，室温下能达到 100ns。另一方面，在 GaN 中掺入稀土或过渡金属元素，理论上预言居里温度 T_c 可以达到室温以上，并且立方相 GaN 的 T_c 比六方相 GaN 高 6%[5]。图 5.2 为不同的 P 型半导体中掺入 5% Mn 原子后的居里温度的理论值[5]。长的自旋寿命[6,7]以及高的居里温度[8]，使立方相 GaN 成为开发半导体自旋电子器件的一种比

较理想的材料。另外，以 GaAs 为衬底生长的立方相 GaN 解理容易、衬底容易制备、价格便宜、后续工艺与成熟的 GaAs 工艺完全兼容，而且生长温度低，有利于制备 GaN 量子阱器件和异质结器件，这为进一步制备自旋器件提供了很好的基础。因此，对 GaN，尤其是立方相 GaN 的自旋性质做系统的研究，非常有必要。GaN 优越的性能已经吸引了很多自旋电子学领域学者的关注[9~16]，然而想要真正实现 GaN 材料体系的自旋相关器件还有很远的路要走。

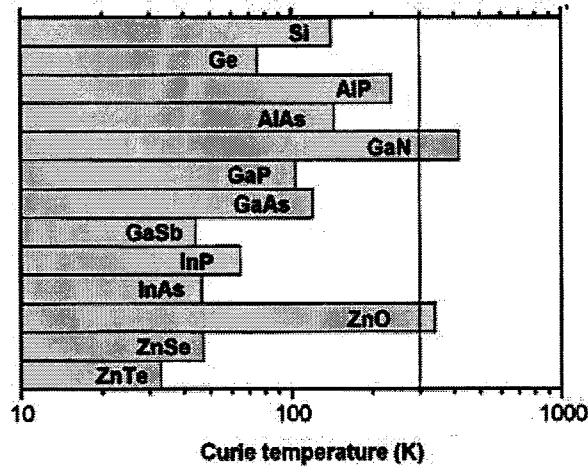


图 5.2 不同的 P 型半导体中掺入 5%Mn 原子后的居里温度的理论值。

5.2 高纯立方相 GaN 的光谱性质以及实验配置

本实验所用的立方相 GaN 是利用有机金属化学气相沉积法 (metalorganic vapor phase epitaxy, MOVPE) [17] 在 (001) GaAs 衬底上生长的。图 5.3 为立方相 GaN 的 PL 谱，在 10K 时 PL 中心波长 λ_{PL} 在 $\sim 379\text{nm}$ ($\sim 3.27\text{eV}$)，半高宽非常窄；在 300K 时，PL 中心波长 λ_{PL} 在 $\sim 386\text{nm}$ ($\sim 3.21\text{eV}$)，半高宽为 $\sim 5.4\text{nm}$ ($\sim 43\text{meV}$)。这显示了典型的高纯立方相 GaN 的光谱特性[18]。在光谱中也没有发现六方相 GaN 的发光。

我们采用的激光器还是相干公司的掺钛蓝宝石锁模激光器（见第三章 3.2.2 节），经过一个倍频器将激光波长变为紫外波段，波长范围在 350~450nm 连续可调。倍频晶体是 LBO 晶体，工作范围在 700~1000nm，转换效率最高能达到 30%。光路配置中的反射镜、偏振片、 $\lambda/2$ 波片、偏振分光棱镜、汇聚透镜、光电探测器等都采用工作波长范围在紫外波段的。激发波长选择在克尔信号最大

处即克尔共振波长, 如图 5.4 所示。激发光和探测光, 近垂直入射到样品, 在样品表面汇聚成直径 $\sim 100\mu\text{m}$ 的光斑, 平均功率分别为 10mW 和 1mW。此时每个激光脉冲激发的载流子浓度大约为 $5\times 10^{16}\text{cm}^{-3}$ 。样品放置在牛津公司的磁光低温恒温系统中, 由于 GaN 样品有效 g 因子比较大, 对磁场比较敏感, 因此每次在零磁场下测量时, 都需要进行退磁处理。磁场方向平行样品平面, 即垂直于自旋极化方向。

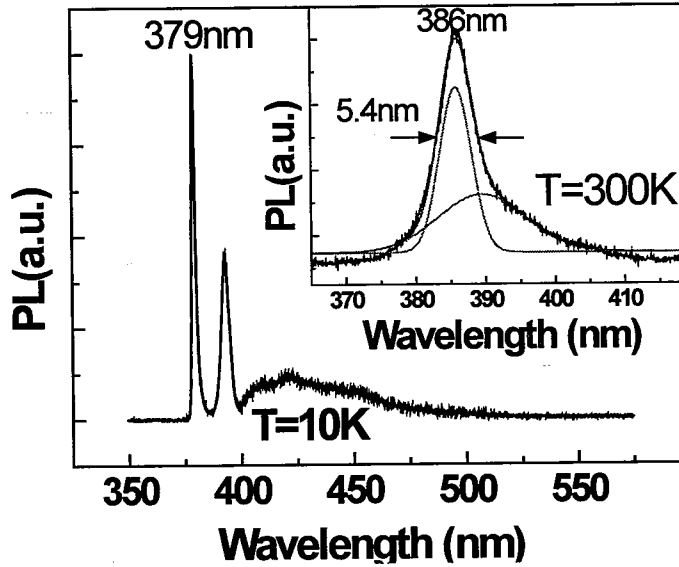


图 5.3 立方相 GaN 的 PL 谱, $T=10\text{K}$ 。插图中为 $T=300\text{K}$ 的 PL 谱。

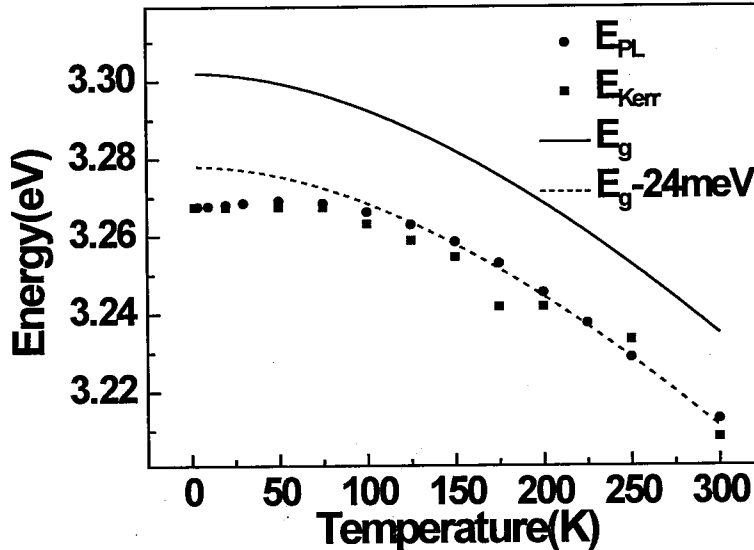


图 5.4 立方相 GaN 能隙 E_g 以及 PL、克尔激发光能量 E_{PL} 、 E_{Kerr} 的温度依赖关系。

5.3 立方相 GaN 中 ns 量级的长自旋寿命

跟预期的一样，我们在立方相 GaN 中观察到了非常长的自旋寿命。图 5.4 (a) 为 2K、100K、300K 温度下自旋弛豫过程，红色的代表外加 0.1T 磁场的自旋信号。我们可以看到，即使在室温自旋的寿命也非常长。通过拟合，可以得到 300K 时自旋寿命大约为 1.5ns。通过外加磁场，一方面我们可以证明这是自旋信号，另一方面我们可以观察垂直方向自旋弛豫和面内自旋弛豫的各向异性情况。从图 5.4 (a) (b) 中我们可以看出，不考虑自旋进动，零磁场和外加磁场情况下自旋弛豫的过程是基本一样的，这表明垂直方向的自旋弛豫和面内自旋弛豫是各向同性的。这跟六方相 GaN 自旋性质不同，在六方相 GaN 中自旋弛豫垂直分量和面内分量是各向异性的[9,10]。

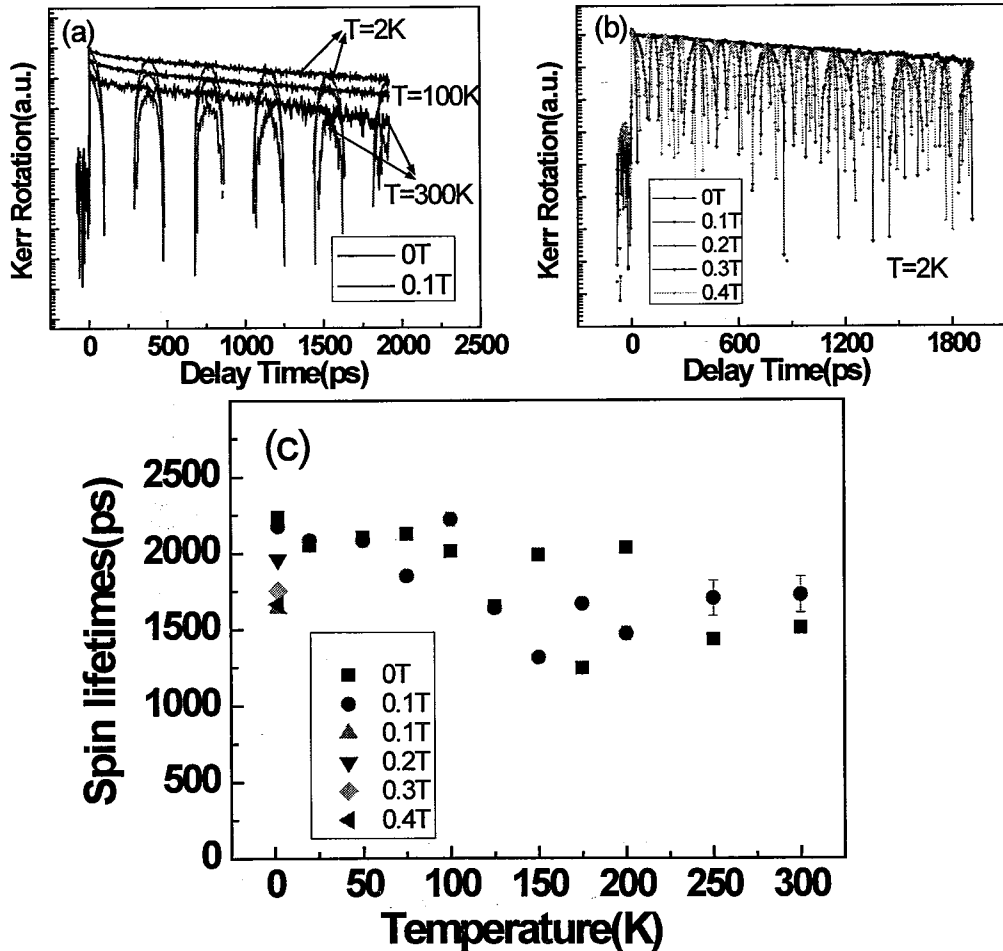


图 5.5 (a) 在 T=2K、100K、300K 时立方 GaN 的克尔信号，红色为外加 0.1T 磁场的自旋进动信号。(b) 不同磁场下的克尔信号，T=2K。(c) 自旋寿命与温度的依赖关系。

图 5.4 (c) 为不同磁场下自旋寿命与温度的依赖关系, 自旋寿命对温度的依赖性很弱, 在 100K 以上自旋寿命大约在 1.7ns, 100K 以下大约在 2ns。

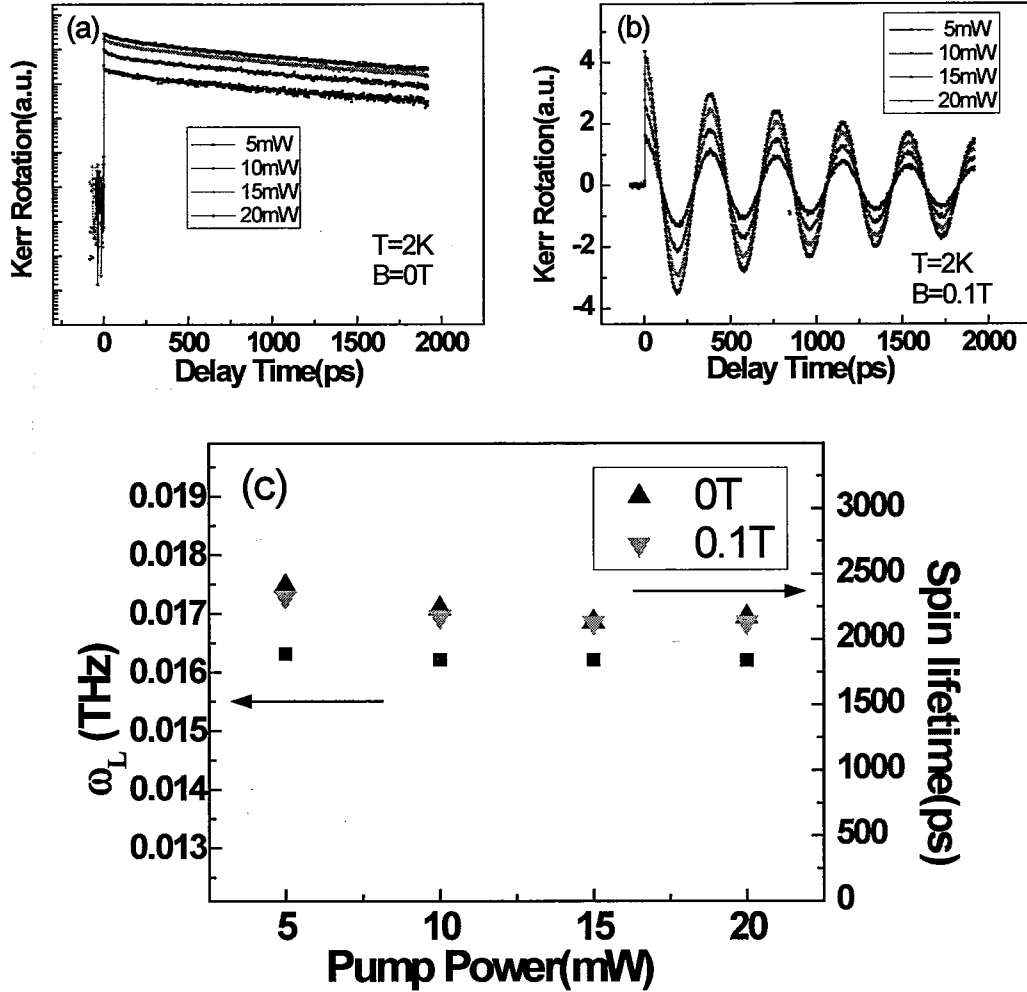


图 5.6 不同激发功率的自旋弛豫过程 (a) $B=0T$, (b) $B=0.1T$, 除了信号大小, 自旋寿命和自旋进动频率都不随激发功率改变。(c) 为自旋寿命和 $B=0.1T$ 时进动频率与激发功率的关系。温度 $T=2K$ 。

通过改变激发功率来改变光激发载流子浓度, 我们可以观察自旋动力学过程与光激发载流子浓度的关系。发现, 激发功率从 5mW 到 20mW, 除了影响克尔信号的大小, 并不影响自旋的衰退过程 (见图 5.6 (a)) 和自旋进动频率 (见图 5.6 (b))。图 5.6 (c) 为 $T=2K$ 时自旋寿命以及 $B=0.1T$ 时自旋进动频率随激发光功率的关系, 这里只给出 $T=2K$ 时的数据, 事实上在 100K 和 300K 的情况也一样。因此我们认为自旋动力学过程与光激发载流子浓度无关。

5.4 电子有效 g 因子

如图 5.7 (a) 所示, 自旋进动频率线性依赖于外磁场强度, 斜率给出有效 g 因子: $g = 1.93 \pm 0.02$ 。图 5.7 (b) 为 $B=0.1\text{T}$ 时自旋进动频率与温度的依赖关系, 在 $2\text{K} \sim 300\text{K}$ 范围, 自旋进动频率几乎不随温度变化, 这也可以从图 5.5 (a) 中可以看出, 因此我们认为有效 g 因子也不随温度变化。 g 因子的绝对值大小和温度依赖关系, 都与之前报道中利用 ESR 方式获得的结果一致[19~21]。从图 5.6 (b) 和 (c) 中, 我们还可以知道, 电子有效 g 因子也不依赖于光激发载流子浓度。

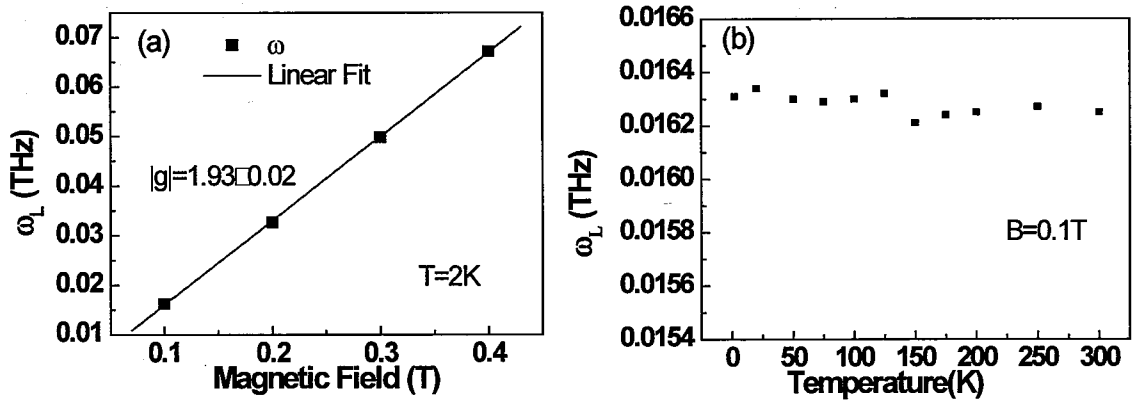


图 5.7 (a) 自旋进动频率与磁场的线性依赖关系, 斜率给出有效 g 因子 1.93 ± 0.02 。(b) $B=0.1\text{T}$ 时自旋进动频率不随温度变化, 因此可以说有效 g 因子也不随温度变化。

5.5 立方相 GaN 中可能的自旋弛豫机制

GaN 具有大的禁带宽度 (六方相 GaN 3.4eV , 立方相 GaN 3.2eV , GaAs 1.5eV), 小的自旋分裂 (GaN 12meV , GaAs 34meV), 因此由体反转不对称性引入的 Dresselhaus 自旋-轨道耦合项非常小。而 DP 机制在闪锌矿结构 III-V 半导体中本应占主导地位, 那么如果不存在 Rashba 项的情况下, GaN 中的自旋寿命非常长, 和我们实验中观察到的结果一致。正如我们在 5.1 节中讨论的, 理论上已经预言, 立方相 GaN 即使在室温下也有非常长的自旋寿命, 比 GaAs 长 3 个数量级, 能达到 100ns 。而对于六方相 GaN 由于其具有纤锌矿反转不对称性, 除了 Dresselhaus 项还出现了依赖于 $\vec{k}$ 的一次方项[9,12], 类似量子阱中

的 Rashba 项, 并且这一项很强, 占据主导地位, 因此六方相 GaN 自旋寿命受此限制, 在室温下只有几十甚至十几皮秒[9,15,22]。我们观察到立方相 GaN 中自旋寿命虽然很长但并没有 DP 机制下预言的那么长, 而且对温度和激发载流子浓度的依赖性非常弱, 这不符合 DP 自旋弛豫机制。因此我们认为立方相 GaN 中 DP 自旋弛豫机制被抑制。

EY 自旋弛豫机制是由自旋翻转的动量弛豫过程造成的, 主要在低温并具有大的缺陷浓度时, 会成为限制自旋寿命的主要自旋弛豫机制; EY 自旋弛豫机制, 通常在自旋-轨道耦合比较强的窄禁带半导体中会起主要作用, 但在宽禁带材料中比较弱。EY 机制下, 自旋寿命随着温度升高而减小, 这跟我们的实验结果不符。

BAP 自旋弛豫机制下自旋寿命不依赖于温度变化, 但 BAP 机制一般在 p 型半导体中才变得重要, 并且 p 型掺杂浓度需要足够高。在 BAP 机制下, 自旋寿命随激发光的功率增加而减小[23], 这跟我们得实验结果不符 (见图 5.6)。因此 EY 机制和 BAP 机制也无法合理解释立方相 GaN 中的自旋弛豫过程。

为了寻找其他可能的自旋弛豫机制, 我们研究了样品 PL 谱中心波长能量 E_{PL} 随温度的依赖关系, 如图 5.4 所示, 其中黑的实线是立方相 GaN 能隙 (bandgap) E_g , 这与之前的研究符合地很好[18,24~26]。 $T > 100K$ 时主要是自由激子发光, 此时自由激子束缚能为 $24meV$ 。 $T < 100K$ 时 E_{PL} 开始偏离 $E_g - 24meV$, 这是由于低温下束缚激子的贡献越来越大。从这结果来看, 在 $T > 100K$ 时, 我们实验观察到的是自由激子的自旋动力学过程, 而在 $T < 100K$ 时可能是束缚在浅施主中心的激子。然而自由激子的寿命非常短, 只有几十个皮秒。而自旋寿命取决于自由激子寿命和自旋弛豫时间, 如果是自由激子的动力学过程, 不可能有这么长的自旋寿命。

5.6 本章小结

本章研究了立方相 GaN 体材料的自旋动力学性质。发现立方相 GaN 中自旋寿命非常长, 室温下也达到 ns 量级。并且自旋寿命基本不依赖于温度、磁场、光激发载流子浓度。我们所熟悉的 DP 机制, EY 机制, BAP 机制都无法合理

解释实验结果。要确定立方相 GaN 中的自旋弛豫机制还需要更进一步的研究。

参考文献

- [1] H. Morkoç and S. N. Mohammad, *Science*, **1995**, 267, 51.
- [2] F. A. Ponce and D. P. Bour, *Nature(London)*, **1997**, 386, 351.
- [3] U. K. Mishra, L. Shen, T. E. Kazior and Y.-F. Wu, *Proc. IEEE*, **2008**, 96, 287.
- [4] S. Krishnamurthy, M. van Schilfgaarde and N. Newman, *Appl. Phys. Lett.* **2003**, 83, 1761.
- [5] T. Dietl, H. Ohno, F. Matsukura, J. Cibert and D. Ferrand, *Science*, **2000**, 287, 1019.
- [6] J. Rudolph, D. Hägele, H. M. Gibbs, G. Khitrova and M. Oestreich, *Appl. Phys. Lett.* **2003**, 82, 4516.
- [7] M. Oestreich, J. Rudolph, R. Winkler and D. Hägele, *Superlattices and Microstruct.* **2005**, 37, 306.
- [8] I. Žutić, J. Fabian and S. D. Sarma, *Rev. Mod. Phys.* **2004**, 76, 323.
- [9] J. H. Buß, J. Rudolph, F. Natali, F. Semond, and D. Hägele, *Phys. Rev. B* **2010**, 81, 155216.
- [10] J. H. Buß, J. Rudolph, T. Schupp, D. J. As, K. Lischka and D. Hägele, *Appl. Phys. Lett.* **2010**, 97, 062101.
- [11] J. H. Buß, J. Rudolph, F. Natali, F. Semond and D. Hägele, *Appl. Phys. Lett.* **2009**, 95, 192107.
- [12] J. Y. Fu and M. W. Wu, *J. Appl. Phys.* **2008**, 104, 093712.
- [13] A. Tackeuchi, H. Otake, Y. Ogawa, T. Ushiyama, T. Fujita, F. Takano, and H. Akinaga, *Appl. Phys. Lett.* **2006**, 88, 162114.
- [14] Z. G. Yu and S. Krishnamurthy, *Phys. Rev. B* **2005**, 71, 245312.
- [15] B. Beschoten, E. Johnston-Halperin, D. K. Young, M. Poggio, J. E. Grimadi, S. Keller, S. P. DenBaars, U. K. Mishra, E. L. Hu and D. D. Awschalom, *Phys. Rev. B* **2001**, 63, 121202(R).
- [16] W. -T. Wang, C. L. Wu, J. C. Chiang, Ikai Lo, H. F. Kao, Y. C. Hsu, W. Y.

- Pang, D. J. Jang, M.-E. Lee, Y.-C. Chang and C.N. Chen, *J. Appl. Phys.* **2010**, 108, 083718.
- [17]D. Xu, H. Yang, J. B. Li, S. F. Li, Y. T. Wang, D. G. Zhao, and R. H. Wu, *J. Electron. Mater.* **2000**, 29, 177.
- [18]D. Xu, H. Yang, J. B. Li, D. G. Zhao, S. F. Li, S. M. Zhuang and R. H. Wu, *Appl. Phys. Lett.* **2000**, 76, 3052.
- [19]A. Scholle, S. Greulich-Weber, D. J. As, Ch. Mietze, N. T. Son, C. Hemmingsson, B. Monemar, E. Janzén, U. Gerstmann, S. Sanna, E. Rauls, and W. G. Schmidt, *Phys. Status Solidi B* **2010**, 247, 1728.
- [20]M. Fanciulli, *Physica B* 205, 87(1995); M. Fanciulli, T. Lei and T. D. Moustakas, *Phys. Rev. B* **1993**, 48, 15144().
- [21]M. W. Bayerl, M. S. Brandt, T. Graf, O. Ambacher, J. A. Majewski and M. Stutzmann, *Phys. Rev. B* **2001**, 63, 165204.
- [22]H. M. Zhao, B. L. Liu, L. W. Guo, C. L. Tan, H. Chen, D. M. Chen, *Appl. Phys. Lett.* **2007**, 91, 252105.
- [23]S. Akasaka, S. Miyata, T. Kuroda, and A. Tackeuchi, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 2083 (2004).
- [24]G. Ramírez-Flores, H. Navarro-Contreras and A. Lastras-Martínez, *Phys. Rev. B* **50**, 8433(1994).
- [25]J. Menniger, U. Jahn, O. Brandt, H. Yang and K. Ploog, *Phys. Rev. B* **53**, 1881(1996).
- [26]D. J. As, F. Schmilgus, C. Wang, B. Schöttker, D. Schikora and K. Lischka, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1311(1997).

第六章 总结

本论文的核心内容是根据III-IV族半导体中主要的自旋弛豫机制—DP 机制，通过能带工程设计特殊样品结构、外加门电压、选择半导体材料及生长晶向等方式，实现半导体中对自旋动力学的操控过程。半导体中的自旋动力学过程主要利用时间分辨的克尔旋转光谱来表征。论文的主要内容和研究成果有：

一、系统研究了由铝组分渐变引起的倾斜势垒（001）取向 GaAs/AlGaAs 不对称量子阱中电子的自旋动力学。由于 Dresselhaus 自旋-轨道耦合项和量子阱不对称势的共同作用，电子在外磁场下的面内自旋分裂变得各向异性。这种各向异性随温度升高而减小，200K 以上消失。在此研究中还发现通过改变势垒铝组分引入量子阱限制势不对称的方式并不能引入可观测的 Rashba 自旋-轨道耦合项。此结果发表在 *Nanoscale Research Letters* 2011,6:520。

二、研究了单边调制掺杂的（001）取向 GaAs/AlGaAs 量子阱中电子的自旋动力学。在低温下 $T < 100\text{K}$ ，同时观测到自旋弛豫各向异性和自旋进动各向异性。在 $T > 100\text{K}$ 时，自旋进动各向异性消失，自旋弛豫面内各向异性也消失，但垂直方向的自旋弛豫速率依然不同于面内自旋弛豫速率。此结果由于样品质量不是很好，还存在一定的问题，需要进一步研究。

三、分别研究了（111）A 和（111）B 衬底生长的 NIP(PIN)结构 GaAs/AlGaAs 多量子阱中外加偏压对自旋弛豫过程的控制。由于电场引入的 Rashba 项与 Dresselhaus 项的抵消作用，自旋寿命可以通过外加电场的方式被极大地延长。但是所加电场的方向对于（111）A 和（111）B 样品是相反的，这是由于从生长方向来定义电场方向，两个样品 Dresselhaus 项符号是相反的，但是从晶格坐标系考虑，Dresselhaus 项符号是一致的。此结果已经提交到 *Applied Physics Letters*，正在审稿中。

四、研究了一对由铝组分渐变引起的倾斜势垒（111）GaAs/AlGaAs 不对称量子阱中电子的自旋动力学。发现在低温 $T < 100\text{K}$ 时，两块样品的自旋寿命出现很大的偏离。这是（111）GaAs/AlGaAs 量子阱中存在的界面反转不对称性（IIA）项与 Dresselhaus 项相互作用的结果。两块样品自旋寿命的差别逐渐

减小，当 $T > 100\text{K}$ 时基本消失，这与考虑 Dresselhaus 立方项在高温占据主导作用的结果相符。此结果已经提交到 Chinese Physics Letters。

五、研究了立方 GaN 体材料的自旋动力学。发现非常长的自旋寿命，室温下达到 1.5ns ，并且自旋寿命随温度、外加横向磁场和激发光功率的依赖关系非常弱。同时我们也研究了不依赖于温度变化的有效 g 因子，其绝对值为： 1.93 ± 0.02 ，这跟文献报道结果是一致的。