

(110)-GaAs 量子阱中光生载流子对电子自旋弛豫的影响

刘晓波^{1,2}, 张桐耀^{1,2}, 陈院森^{1,2†}

(1. 量子光学与光量子器件国家重点实验室, 光电研究所, 山西大学, 山西 太原 030006;

2. 极端光学协同创新中心, 山西大学, 山西 太原 030006)

摘要: 我们实验研究了(110)-GaAs 量子阱中光生载流子对电子自旋弛豫的影响。通过测量量子阱的荧光寿命和光学吸收计算, 我们能得到不同泵浦光功率下的带间吸收所产生的空穴浓度; 相对应地, 通过双色磁光科尔旋转技术, 我们测量了该 GaAs 量子阱中电子自旋的动力学过程。结合两者, 我们得到了电子自旋弛豫速率与空穴浓度的关系。实验结果表明电子自旋弛豫速率与空穴浓度呈线性依赖关系, 验证了 Bir-Aronov-Pikus 机制主导该体系的电子自旋弛豫。

关键词: 自旋弛豫; 磁光科尔旋转; Bir-Aronov-Pikus 机制

中图分类号: O413

文献标识码: A

文章编号: 1007-6654(2017)02-0195-06

0 引言

与当前信息处理技术相比, 量子计算^[1-3]具有处理速度快、低功耗等显著特点。作为电子的本征物性, 电子自旋态的量子化特性使得电子自旋可以作为量子比特位, 因此在半导体中实现自旋态调控是固态量子计算实现应用的重要途径^[4]。量子调控往往要求电子自旋具有足够长的弛豫时间^[5-6]。在半导体系统中, 电子自旋弛豫主要包括 D'yakonov-Perel(DP) 机制, Elliot-Yafet(EY) 机制以及 Bir-Aronov-Pikus(BAP) 机制^[7]。DP 机制和 EY 机制是描述电子受电子散射影响, 分别在散射后和散射中经历随机自旋-轨道 (spin-orbit interaction, SOI) 作用对电子自旋进度的改变, 从而引起自旋弛豫; BAP 机制则是描述空穴-电子交换作用对电子自旋态的弛豫作用。此外,

电子-原子核的超精细作用被认为是半导体量子结构中电子自旋寿命的最终决定因素^[8]。

(110)-GaAs 量子阱由于具有特定的晶格结构对称性, 其 Dresselhaus 自旋-轨道作用具有 SU(2) 对称性, 即对于量子阱面内方向的电子运动, 电子所经历的 SOI 磁场具有面外方向的同向性, 其幅值大小只与动量在 $[1\bar{1}0]$ 方向的分量有关。对于面外方向的电子自旋, 该体系中的 SOI 磁场与之平行, 导致面外方向的自旋分量没有受到 SOI 作用而随机改变, 即 DP 机制得到了完全抑制, 因此电子自旋在该体系具有长自旋寿命^[9-10]。不同的研究组分别已经在实验上证明, DP 机制在 (110)-GaAs 量子阱中得到了充分抑制, 所测到的长自旋寿命被认为主要受限于 EY 机制和 BAP 机制^[11-12]。由于 EY 机制所决定的

②) 收稿日期: 2017-01-12; 修回日期: 2017-02-20

基金项目: 国家自然科学基金(61574087); 山西省基础研究优秀青年基金(2015021002); 山西省回国留学人员科研资助项目(2015-009)

作者简介: 刘晓波(1991-), 女, 山西大同人, 硕士生, 主要从事半导体自旋电子学方面的研究。E-mail: liuxiaobo.sx@gmail.com。

†通信作者: 陈院森, E-mail: yuansen.chen@sxu.edu.cn, yuansen.chen@googlemail.com。

自旋弛豫速率与温度呈线性关系,因此在低温下 BAP 机制将会主导该体系的自旋弛豫机制。对于 BAP 机制的定量研究,目前在实验上尚未有报道。

在此,我们在实验上定量研究了(110)-GaAs 量子阱中 BAP 机制对电子自旋弛豫的影响。我们采用时间关联单光子计数(time correlated single photon counting, TCSPC)方法测量(110)-GaAs 量子阱荧光寿命,并由此计算光激发空穴浓度;对于同样实验条件,我们利用时间分辨的科尔旋转(time resolved Kerr rotation, TRKR)技术测量电子自旋动力学过程,从而得出自旋弛豫速率与空穴浓度的依赖关系。我们的实验结果和理论计算有较好吻合,验证了 BAP 机制对自旋弛豫的定量影响。

1 实验方法

实验中所研究的样品是在(110)长向的 GaAs 衬底上用分子束外延(molecular beam epitaxy)技术生长的 30 nm 宽的单 GaAs 量子阱。在距离量子阱中心 180 nm 的下方和 200 nm 处的上方,均有一定浓度 Si 掺杂。得益于这种远程掺杂,在 4.2 K 的温度下,此电子气系统有高达 $1.1 \times 10^6 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 的电子迁移率,相应的电子浓度为 $n_e = 1.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 。

TRKR 测量是基于双色泵浦-探测的超快光学技术。泵浦光和探测光脉冲分别由两台互相同步、重复频率为 78.0 MHz 的脉冲激光器产生;两者波长分别为 790 nm 和 811.3 nm。用一个电控位移平台控制探测脉冲和泵浦脉冲的相对时间延迟。其中,泵浦脉冲通过光弹调制器在左旋光与右旋光之间调制,调制频率为 50.2 kHz;基于光学选择法则,泵浦光通过对 GaAs 进行带间激发可以产生电子自旋极化。线性偏振态的探测光脉冲通过斩波器调制光强,调制频率为 183 Hz。所研究的样品置于低温恒温室中。泵浦光和探测光由一个焦距为 100 mm 的透镜聚焦在样品表面,其高斯光斑束腰半宽约 15 μm ,两者互相重合。探测光经过样品后的反射光经过一个沃拉斯顿棱镜后,其互相正交的偏振分量分别进入两个光电

二极管。基于平衡探测和双重锁相技术,我们可以灵敏探测泵浦光所产生的自旋动力学过程。对于荧光寿命的测量,我们采用同样参数的泵浦光。其产生的荧光,被一个单光子探测器收集;使用泵浦光脉冲的电压信号同步 TCSPC 系统,我们可以探测泵浦光所引起的荧光动力学过程。在这篇工作中,所有的测量均在温度为 20 K 的条件下进行。

2 测量结果及分析

如图 1(a)中主图所示,我们测量了 GaAs 量子阱在不同泵浦功率密度条件下的荧光强度动力学过程。从图中的曲线可以得出荧光强度呈自然指数衰减,荧光强度 $I(\Delta t)$ 可表示为 $I(\Delta t) = I_0 \exp(-\Delta t/\tau)$,其中 I_0 是初始荧光强度, τ 为荧光寿命。以此拟合得到的不同光功率密度激发条件下的荧光寿命在图 1(b)中给出。从图中可以得知,随着泵浦光功率密度的增加,荧光寿命增大。在 GaAs 结构中,往往荧光寿命随着温度的升高而变长^[13]。图 1(b)的结果也表明,光激发功率密度的增大会造成电子有效温度的升高。

此外,我们对图 1(a)中荧光动力学的测量结果进行时域上的积分,从而可以得到荧光复合过程中所产生的荧光光子数总和 I_{sum} ,如图 1(a)插图所示。我们发现, I_{sum} 和泵浦功率密度 ρ_{opt} 具有线性依赖关系,即 $I_{\text{sum}} = 7.9 \times 10^3 \cdot \rho_{\text{opt}} \text{ counts}/(\text{W} \cdot \text{cm}^{-2})$ 。这种线性关系说明,在我们所使用的整个功率范围之内,半导体对激发光的吸收都在线性吸收区域,即远离饱和吸收情形。这样,我们可以利用光吸收系数粗略估算单个激光脉冲激发半导体所产生的光生载流子的浓度。我们考虑一个光子只产生一对电子-空穴对,那么所得空穴浓度 N_{h0} 如下:

$$N_{h0} = \alpha \frac{\rho_{\text{opt}}}{f \cdot E} \quad (1)$$

其中,GaAs 量子阱对泵浦光的吸收率 α 约为 0.8 % (考虑到量子阱厚度为 30 nm, GaAs 的光吸收系数为 $2 \times 10^{-4}/\text{cm}$ 以及折射率为 3.6^[14]), 泵浦光脉冲重复频率 $f = 78.0 \text{ MHz}$, 泵浦光单个

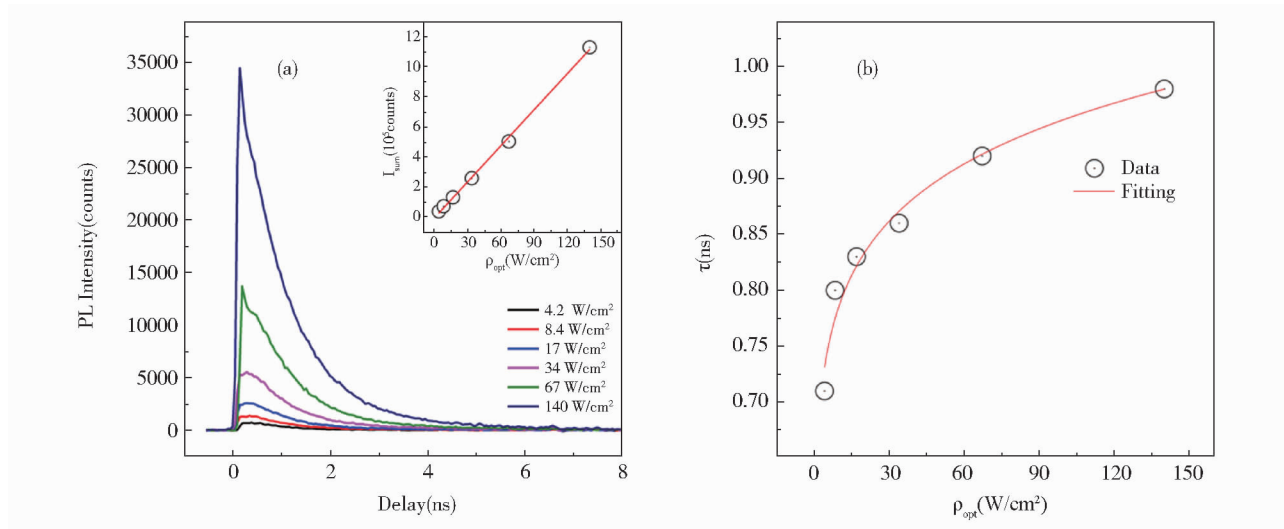


Fig. 1 (a) Excitation density dependence of photoluminescence dynamics. Inset shows the integrated photoluminescence count number versus the excitation power density. The solid line is a linear fitting of the experiment data.

(b) The photoluminescence lifetime versus the pump power density. The solid line serves as guides for the eyes.

图 1 (a) 主图：荧光强度动力学过程与泵浦功率密度的依赖关系。

图 1(a) 插图：荧光强度与泵浦激发功率密度的依赖关系；实线为实验数据拟合。

(b) 荧光寿命与光激发功率密度的依赖关系；实线为视觉导引。

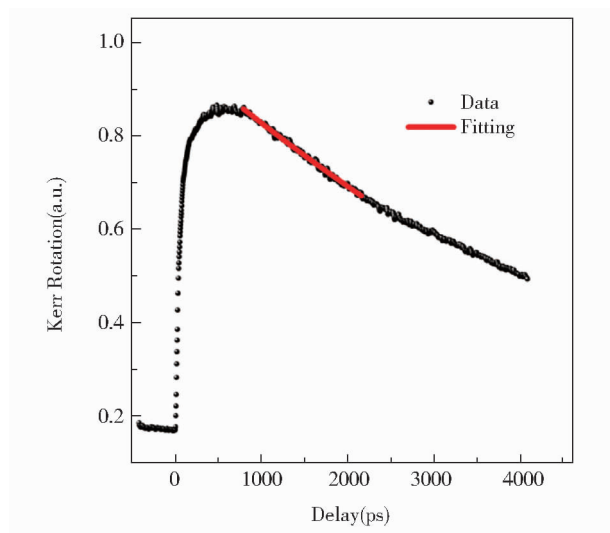


Fig. 2 Time-resolved Kerr rotation in the (110)-GaAs quantum wells for $\rho_{\text{opt}} = 34 \text{ W/cm}^2$.

The solid line is a fitting of an exponential decay for $800 \text{ ps} < \Delta t < 2000 \text{ ps}$.

图 2 GaAs 量子阱的时间分辨的科尔旋转测量；

泵浦光功率密度为 34 W/cm^2 。实线为

$800 \text{ ps} < \Delta t < 2000 \text{ ps}$ 时间区间的指数衰减拟合。

光子能量 $E = 1.56 \text{ eV}$ 。

进一步，我们利用 TRKR 技术测量 (110)-GaAs 量子阱的自旋弛豫。图 2 是 (110)-GaAs 量子阱中探测到的自旋动力学过程。对于时延 $\Delta t > 800 \text{ ps}$ ，电子自旋强度的衰退是一个自然指数衰减过程，可以由 $S(\Delta t) = S_0 \exp(-\Delta t/\tau_s)$ 表示，其中 τ_s 表示电子自旋弛豫时间常数， S_0 表示自旋极化的初始强度。通过对 $800 \text{ ps} < \Delta t < 2000 \text{ ps}$ 阶段进行数值拟合，我们可以得到电子自旋弛豫时间 τ_s 。

为了获得空穴浓度与电子自旋弛豫时间的依赖关系，我们需将 $\Delta t = 800 \text{ ps} \sim 2000 \text{ ps}$ 阶段在不同泵浦功率条件下激发的有效空穴浓度计算出来。基于公式 (1)，我们可以计算出不同泵浦功率密度激发条件下，光激发所产生的空穴的总数 N_{h0} ；基于图 1(a) 中的荧光动力学测量结果和荧光寿命，通过区间积分我们可以计算出在 $800 \text{ ps} < \Delta t < 2000 \text{ ps}$ 时间区间的剩余空穴数量 N_h 。 N_h 与泵浦功率密度的关系如图 3(a) 插图所示，可以看出对于泵浦光功率密度从 4.2 W/cm^2 增加到 140 W/cm^2 ，相应的剩余空穴浓度 N_h 也从 $0.03 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 增加到 $1.7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 。

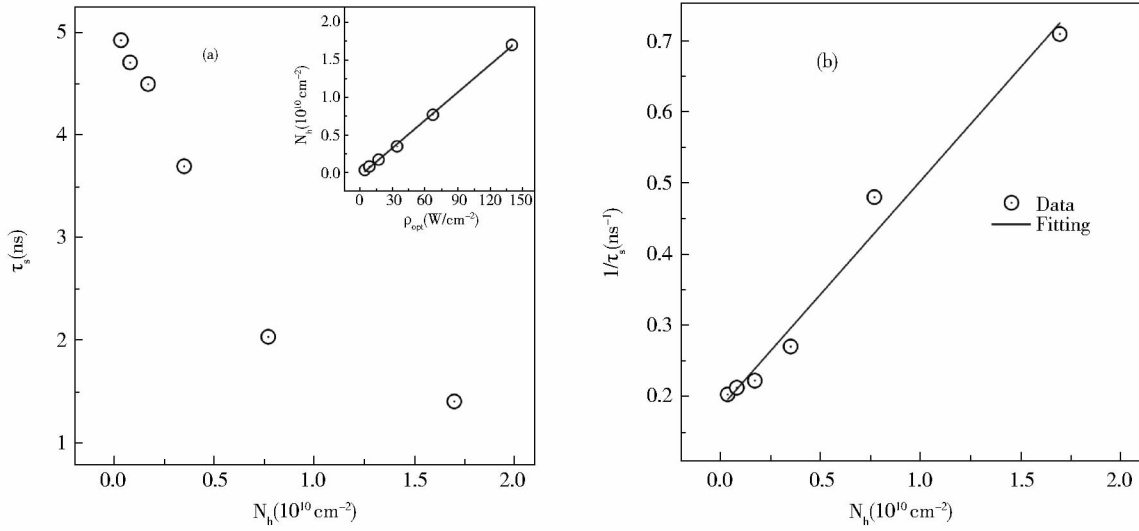


Fig. 3 (a) Spin relaxation time constant versus the hole density. Inset shows the hole density versus pump power density. (b) Spin relaxation rate versus the hole density. The solid line is a linear fitting.
 图3 (a) 主图: 自旋弛豫时间与空穴浓度的关系。插图: 光激发空穴浓度与泵浦功率密度的对应关系。
 (b) 自旋弛豫速率与空穴浓度关系; 实线为实验数据拟合。

图 3(a) 主图所示的是自旋弛豫时间 τ_s 与剩余空穴浓度 N_h 的关系。可以看出, 在该 (110)-GaAs 量子阱中, 空穴浓度的增加会明显引起自旋弛豫时间的减小。在最低光功率密度激发条件下 ($\rho_{opt} = 4.2 \text{ W/cm}^2$), $\tau_s = 4.9 \text{ ns}$ 。由于此时 N_h 远远小于电子浓度 $n_e = 1.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, 可以认为自旋弛豫不受光生载流子的影响, 该自旋寿命主要受限于量子阱不同的材料结构引起的面内方向的 Rashba 类型 SOI 作用。当光激发功率密度逐渐增大至 $\rho_{opt} = 140 \text{ W/cm}^2$, 电子自旋寿命降至 1.4 ns 。我们注意到, 在我们所使用的激发光功率密度范围内, 所产生的电子温度的升高不会导致自旋寿命的减小^[15], 因此我们认为空穴浓度的增加是自旋寿命减小的物理原因。为了更直观地显示空穴对自旋弛豫的影响, 图 3(b) 画出了自旋弛豫速率 τ_s^{-1} 与 N_h 的关系。通过拟合, 可以得到 $\tau_s^{-1} = \tau_0^{-1} + k \cdot N_h$, 其中常数 τ_0^{-1} 是不考虑额外空穴作用情况下的自旋弛豫速率, 斜率 k 表征 N_h 对自旋弛豫速率的影响, 其拟合值为 $k = 0.32 \times 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{ns}$ 。

BAP 作用描述了空穴对自旋弛豫的影响。其物理图像是空穴-电子交换作用对电子自旋实

现态翻转; 由于空穴的自旋弛豫速率非常快 (在皮秒量级), 因此在纳秒时间尺度, 非自旋极化的空穴会导致电子自旋极化的衰减。BAP 机制对自旋弛豫速率的贡献可以写为^[16]:

$$\tau_{BAP}^{-1} = N_h \cdot \sigma_{sp-2D} \cdot v_e \quad (2)$$

其中, N_h 是参与 BAP 作用的空穴浓度, σ_{sp-2D} 是空穴-电子交换作用的有效长度, v_e 是电子速率。在实验中我们光激发产生的光电子浓度远小于掺杂电子浓度, 因此我们可以简单近似得到电子速率为 $v_e = (2E_f/m_e)^{1/2}$, 其中 E_f 为电子费米能级, m_e 为电子的有效质量。对于 GaAs 量子阱, 电子的态密度 $\rho_{DOS} = 2.8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ meV}^{-1}$, 因此可以得到 $E_f = n_e/\rho_{DOS} \approx 4.6 \text{ meV}$ 。我们采用 $m_e = 0.067m_0$, 其中 m_0 为电子静质量 ($m_0 \approx 9.1 \times 10^{-31} \text{ Kg}$)。基于此, 可以得到 $v_e \approx 1.6 \times 10^7 \text{ cm/s}$ 。采用文献[16]的计算结果, 在体材料的 GaAs 中 $\sigma_{sp-3D} \approx 10^{-16} \text{ cm}^2$; 对于二维系统, 我们可以粗略计算得到空穴-电子的交换长度为 $\sigma_{sp-2D} \approx \sigma_{sp-3D}^{1/2} \approx 1.0 \times 10^{-8} \text{ cm}$ 。因此, 对于公式(2), 我们可以得到 $\tau_{BAP}^{-1}/N_h = \sigma_{sp-2D} \cdot v_e \approx 1.6 \times 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{ns}$ 。这个比值与我们前面拟合得

到的斜率 $k = d(\tau_{BAP}^{-1})/dN_h = 0.32 \times 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{ns}$ 比较接近, 差别在一个数量级范围之内。这种差别可能来自于对光吸收的偏大估算, 以及对二维体系中空穴-电子交换作用长度的偏大估算。总而言之, 我们定量验证了 BAP 机制在我们的实验中为自旋弛豫的主导机制。

3 总结

本文实验研究了电子-空穴的相互作用对电子自旋弛豫的影响。通过测量荧光动力学过程和计算光激发产生的电子-空穴密度, 我们得出空穴浓度的动态变化过程。通过测量自旋动力学

过程, 我们可以实验上得出自旋弛豫时间与空穴浓度的依赖关系。此外, 基于 BAP 机制, 我们理论估算了自旋弛豫速率与空穴浓度的线性关系比值。实验上得出的依赖关系系数和理论计算比值互相吻合, 因此我们验证了在 (110)-GaAs 量子阱中, BAP 机制是低温下电子自旋弛豫的主导因素。

致谢

我们感谢 IBM-Zurich 的 G. Salis 以及 ETH Zurich 的 W. Wegscheider 和 S. Faelt 提供的半导体量子阱样品。

参考文献:

- [1] Nielsen M A, Chuang I L. Quantum Computation and Quantum Information[M]. Cambridge University Press, 2000.
- [2] Awschalom D D, Flatto M E. Challenges for Semiconductor Spintronics. [J]. Nature Physics, 2007, 3: 153. DOI: 10.1038/nphys551.
- [3] 赵敏, 秦丽, 马宗敏, 王芳, 张少文, 林朝东, 刘俊. 金刚石集群氮空位(NV)色心自旋态调控设计与实现[J]. 量子光学学报, 2016, 22(4), 379-385. DOI: 10.3788/jqo20162204.0013.
- [4] Loss D, DiVincenzo D P. Electron Spins in Quantum Dots as Quantum Bits[J]. Phys Rev A, 1998, 57, 120-126. DOI: 10.1023/A:1010003927086.
- [5] Kikkawa J M, Smorchkova I P, Awschalom D D. Room-temperature Spin Memory in Two-dimensional Electron Gases [J]. Science, 1997, 277: 1284. DOI: 10.1126/science.277.5330.1284.
- [6] Yokota N, Yasuda Y, Ikeda K, Kawaguchi H. Electron Spin Relaxation Time in (110) InGaAs/InAlAs Quantum Wells [J]. J Appl Phys, 2014, 116, 023507. DOI: 10.1063/1.4887803.
- [7] Meier F, Zakharchenya B P. Optical Orientation[M]. Elsevier Science Publishing, 1984.
- [8] Merkulov I A, Efros Al L, Rosen M. Electron Spin Relaxation by Nuclei in Semiconductor Quantum Dots[J]. Phys. Rev. B, 2002, 65, 205309. DOI: 10.1103/PhysRevB.65.205309.
- [9] Dyakonov M, Perel V. Spin Relaxation of Conduction Electrons in Noncentrosymmetric Semiconductors[J]. Sov. Phys. Solid State, 1972, 13, 3023-3026.
- [10] Dyakonov M, Kachorovskii V Y. Spin Relaxation of Two-dimensional Electrons in Noncentrosymmetric Semiconductors[J]. Sov Phys Semicond, 1986, 20, 110.
- [11] Ohno Y, Terauchi R, Adachi T, Matsukura F, Ohno H. Spin Relaxation in GaAs(110) Quantum Wells [J]. Phys Rev Lett, 1999, 83: 4196-4199. DOI: 10.1103/PhysRevLett.83.4196.
- [12] Griesbeck M, Glazov M M, Sherman E Ya, Schuh D, Wegscheider W, Korn T. Strongly Anisotropic Spin Relaxation Revealed by Resonant Spin Amplification in (110) GaAs Quantum Wells[J]. Phys Rev B, 2012, 85, 085313. DOI: 10.1103/PhysRevB.85.085313.
- [13] Shah J. Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors, Semiconductor Nanostructures[M]. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1999.
- [14] Madelung O. Semiconductors: Data Handbook[M]. Springer, Berlin, 2004.

- [15] Döhrmann S, Hägele D, Rudolph J, Bichler M, Schuh D, Oestreich M. Anomalous Spin Dephasing in (110) GaAs Quantum Wells: Anisotropy and Intersubband Effects[M]. *Phys. Rev. Lett.*, 2004, **93**, 147405. DOI: 10.1103/PhysRevLett.93.147405.
- [16] Fishman G, Lampel G. Spin Relaxation of Photoelectrons in P-type Gallium Arsenide[J]. *Phys Rev B*, 1977, **16**(2): 820. DOI: 10.1103/PhysRevB.16.820.

Effect of Optical Carriers on Electron Spin Relaxation in a (110)-GaAs Quantum Well

LIU Xiao-bo^{1,2}, ZHANG Tong-yao^{1,2}, CHEN Yuan-sen^{1,2}

(1. *State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Institute of Opto-Electronics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China;*

2. *Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China*)

Abstract: The effect of optical carriers on electron spin relaxation is experimentally investigated in a (110)-orientated GaAs/(Al,GaAs) quantum well by means of two-color time-resolved Kerr rotation (TRKR). The density of excited optical carriers is estimated by measuring the photoluminescence dynamics and calculating the optical absorption. By determining the corresponding spin relaxation rate from TRKR, we can obtain the relation between the spin relaxation rate and the optically generated carrier density. By comparing the theoretical value of the relaxation rate contributed by the Bir-Aronov-Pikus mechanism and the experimentally determined value, we conclude the spin relaxation in this study is dominated by optically generated holes.

Key words: spin relaxation; time-resolved Kerr rotation; Bir-Aronov-Pikus (BAP) mechanism