

doi: 10.3788/gzxb20134209.1083

电子自旋弛豫时间测量中电子自旋扩散的影响

余华梁¹, 陈曦曜²

(1 闽江学院 电子系, 福州 350000)

(2 福建师范大学 物理系, 福州 350000)

摘要:在光注入电子自旋包的不同位置进行时间分辨的泵浦-探测实验时,发现电子自旋信息的退化率不同,揭示了电子自旋扩散对准确测量电子自旋弛豫时间的影响,获得了自旋输运动力学方程的解.对该解进行研究发现,电子自旋扩散对电子自旋弛豫时间测量值的影响可以归结为两个含时间的因子,其中一个因子与泵浦光斑中心和探测光斑中心的距离有关,另一个因子与泵浦光斑尺寸有关.提出了自旋弛豫时间测量实验中消除扩散影响的条件:1)泵浦光斑和探测光斑中心重叠;2)泵浦光斑尺寸足够大.结果表明,泵浦光斑尺寸越大,探测光斑中心越接近于泵浦光斑的中心,则扩散对自旋弛豫时间测量值所造成的影响就越小.

关键词:泵浦-探测光谱;电子自旋扩散;电子自旋弛豫时间测量;自旋弛豫实验光路设计

中图分类号:O473

文献标识码:A

文章编号:1004-4213(2013)09-1083-4

Study of the Influence of Electron Spin Diffusion on Measurement of Spin Relaxation Time

YU Hua-liang¹, CHEN Xi-yao²

(1 Department of Physics and Electronic Information Engineering, Minjiang University, Fuzhou 350108, China)

(2 Department of Physics, Fujian Teacher University, Fuzhou 350108, China)

Abstract: Different decay rates are observed by time-resolved pump-probe spectroscopy at different location at the injected electron spin packet, which indicate that spin diffusion exert influence on the measurement of the time constant of electron spin relaxation. The kinetic equation of spin transport is solved. The solution shows that spin diffusion influence electron spin relaxation time by two factors with . One factor relates to the distance between the center of pump spot and the center of probing spot, the other relates to pump spot size. Two conditions under which one may neglect the influence of diffusion are proposed: 1) the center of pump spot and the center of probing spot overlap; 2) pump spot size is large enough. Results show that the more the center of pump spot close to the center of probing spot and the larger pump spot size is, the less spin diffusion influence the measurement of electron spin relaxation time.

Key words: Pump-probe spectroscopy; Spin diffusion of the electron; Measurement of electron spin relaxation time; Design of experiments to measure the electron spin relaxation time

0 引言

足够长的自旋弛豫时间和足够长的自旋扩散长度是未来半导体自旋电子学应用器件实现的两个必

要条件,二者共同决定了电子自旋信息能否可靠地在整个器件中传输^[1].大量研究结果表明,常温下电子自旋弛豫时间的典型值达到百皮秒以上,由此得到自旋扩散长度的典型值是微米量级^[2-4].成熟的微

基金项目:福建省自然科学基金(No. 2012D110)和福建省省属高校科研专项(No. JK2011039)资助

第一作者:余华梁(1969-),男,讲师,博士,主要研究方向为半导体自旋电子学. Email: yuhualiang_02@163.com

收稿日期:2013-02-20;录用日期:2013-06-28

纳电子学工艺将很有可能应用于制造半导体电子自旋器件的生产中^[5]. 显然, 自旋寿命越长则越有利于制造更可靠的自旋电子学器件. 这种情况使人们格外关注各种半导体材料的电子自旋弛豫时间, 同时也对电子自旋弛豫时间的测定手段提出更高的要求. 在各种测量半导体电子自旋弛豫时间的光学方法中, 泵浦_探测技术的应用最为广泛^[6-7]. 基本的泵浦_探测光路由泵浦光路和脉冲相对延迟量可调的探测光路构成. 泵浦光束和探测光束汇聚于样品上的同一位置. 泵浦光脉冲作用于半导体样品后, 引起样品上电子自旋布居的变化, 样品对探测脉冲的饱和和吸收情况将受到电子自旋布居的影响, 导致其透射光强发生变化, 最后红外探测器和锁相放大器将探测光透射光强的变化量从背景中提取出来, 从而获得电子自旋退布居的信息^[8-10]. 实际上影响探测光透射光光强变化率的因素应当包括三个: 电子和空穴复合、电子自旋弛豫和自旋扩散, 然而人们常常忽略自旋扩散的影响. 这种不计扩散影响的常用方法在实验数据处理上应用起来比较方便, 然而实验事实表明, 忽略扩散的影响有时可能给弛豫时间的测量带来较大的测量误差. 本文通过实验和理论分析来探讨自旋扩散对自旋弛豫时间测量值的影响, 以及消除这一影响的条件, 对自旋弛豫时间测量的实验光路设计具有参考意义.

1 实验

为了研究扩散对电子自旋弛豫时间测量的影响, 采用时-空分辨泵浦-探测实验光路^[11]. 在这个光路上, 飞秒激光束被分为泵浦光束和探测光束, 经过各自的聚焦透镜分别在样品上形成约 $8 \mu\text{m}$ 的光斑; 泵浦光路上设置了两个延迟线, 其中运动方向与光线平行的延迟线用来改变泵浦脉冲和探测脉冲的延迟时间, 而运动方向和光线垂直的延迟线用来改变两个光斑的距离; 探测光斑的位置保持不变. 利用这个光路, 既可以作时间分辨的扫描, 又可以作空间分辨的扫描. 实验在常温下进行. 所采用的钛宝石飞秒激光器脉冲宽度为 200 fs , 重复率为 90 MHz . 所采用的样品是 GaAs/AlGaAs 多量子阱, 由 11 个周期的本征 GaAs (6 nm) 和 AlGaAs (10 nm) 组成. 选择激光的中心波长约为 830 nm . 对于 5 mW 泵浦功率, 当探测脉冲相对于泵浦脉冲延迟时间为 10 ps 时, 将空间分辨的扫描所得到的同向圆偏振探测光的透射信号减去反向圆偏探测光的透射信号, 得到了两个自旋取向的电子的浓度差 $N_+ - N_-$ 的空间分布, 如图 1. 曲线的峰值对应的横坐标 ($12.5 \mu\text{m}$)

表示两个光斑重叠位置, 也是探测光斑所在的位置. 由图 1 可见, 在 $0 \mu\text{m}$ 至 $25 \mu\text{m}$ 的范围内, 泵浦光斑激发的非平衡电子存在自旋极化, 在这一范围内作时间分辨的扫描都能够得到泵浦_探测的饱和吸收光谱.

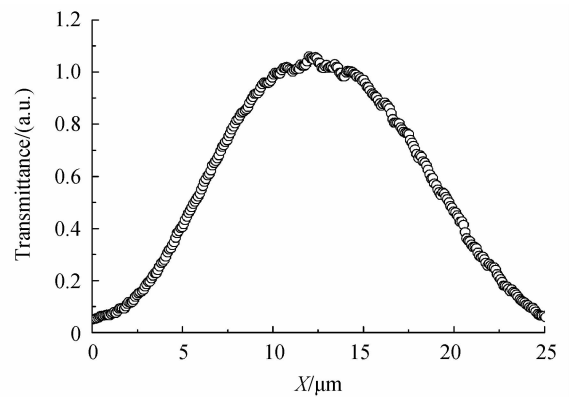


图 1 延迟时间为 10 ps 时空间分辨饱和吸收光谱

Fig. 1 space-resolved pump-probe spectroscopy at $t = 10 \text{ ps}$

利用空间分辨扫描的功能, 依次选定探测光斑中心与注入电子自旋波包中心的距离为 $0 \mu\text{m}$ 和 $4 \mu\text{m}$, 然后分别作时间分辨的扫描, 得到两条 $N_+ - N_-$ 随时间退化的曲线, 如图 2. 单指数拟合实验曲线, 求得曲线的退化率, 分别为 $\kappa_1 = 1/37 \text{ fs}$ 、 $\kappa_2 = 1/40.5 \text{ ps}$. 若假定 $N_+ - N_-$ 随时间衰减仅由电子和空穴复合以及电子自旋弛豫造成, 则退化率可表为 $\kappa = 2/\tau_s + 1/\tau_r$, 其中 τ_r 为非平衡载流子的复合时间, τ_s 为电子自旋弛豫时间. 代入复合时间测量值 $\tau_r = 400 \text{ ps}$ ^[12], 则可以算得自旋弛豫时间常量的测量值分别为 $\tau_{s_1} = 81.5 \text{ ps}$ 、 $\tau_{s_2} = 90.1 \text{ ps}$. 以上结果表明此, 探测光斑相对泵浦光斑中心的位置变化, 对电子自旋弛豫时间测量是有显著的影响的, 因此, 若要精确测量电子自旋弛豫时间, 必需深入研究这一现象背后的原因. 影响 $N_+ - N_-$ 随时间衰减速率的可能因素, 除了电子和空穴复合以及电子自旋弛豫外, 自旋扩散、浓度差别也可能对 $N_+ - N_-$ 随时间衰减的速率产生重要的影响. 为了分析电子浓度的影响, 注意两个位置浓度的大小关系: 探测光斑距离泵浦光斑越远, 则探测点的电子浓度越低. 按 DP 机制^[13-14], 电子浓度越大, 则电子自旋弛豫时间越长, 所以仅考虑浓度的影响, 则两光斑距离越远, τ_s 的测量值应当越小, 与本实验的结果在变化趋势上正相反. 因此可以认为引起自旋弛豫时间测量值不同的主要原因不是浓度差别, 而是扩散的快慢不同. 在泵浦光注入的自旋高斯形波包上, 不同位置对应的 $N_+ - N_-$ 的值和斜率不同, 扩散的速率也就不同, 从而导致 $N_+ - N_-$ 衰减的时间常量不同.

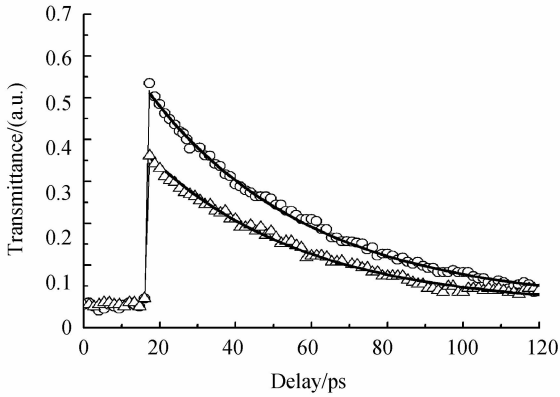


图2 时间分辨泵浦和吸收光谱. 空心圆和空心三角形数据点分别对应于光斑中心距离 $0 \mu\text{m}$ 和 $4 \mu\text{m}$

Fig. 2 Time-resolved pump-probe spectroscopy. Open dots and open triangles are corresponding to $\Delta x = 0 \mu\text{m}$ and $\Delta x = 4 \mu\text{m}$ respectively

2 理论分析

飞秒光脉冲注入的自旋极化电子的输运和弛豫过程可以用连续性方程来描述,即

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

式中 N_+ 和 N_- 代表自旋向上和自旋向下非平衡载流子的浓度, D_s 为自旋扩散系数, ∂t 代表泵浦脉冲和探测脉冲的时间差, ∂x 为探测光斑与注入电子自旋波包中心的距离. 它的解可表为

$$N_+ - N_- = (N_+ - N_-)_0 \frac{1}{\sqrt{4\pi D_s(t+t_0)}} \cdot \exp\left[-\frac{x^2}{4D_s(t+t_0)}\right] \exp\left[-\left(\frac{2}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_r}\right)t\right] \quad (2)$$

式中, $(N_+ - N_-)_0$ 为 0 时刻 $N_+ - N_-$ 的值, t_0 决定了光注入电子自旋波包的初始宽度 ($\omega_0 = \sqrt{8D_s t_0}$). 二能级系统的吸收系数和透射光强可表为^[15]

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

$$I_{\pm} = I_0 e^{-\alpha_{\pm} L} \approx I_0 e^{-\alpha_0 L} \left(1 + \alpha_0 L \frac{N_{\pm}}{N_s}\right) = I_{T_0} \left(1 + \alpha_0 L \frac{N_{\pm}}{N_s}\right) \quad (4)$$

$$I_+ - I_- = I_{T_0} \alpha_0 L \frac{N_+ - N_-}{N_s} \quad (5)$$

式中 $I_{T_0} = I_0 \exp(-\alpha_0 L)$. 则 σ_+ 与 σ_- 探测光透射样品后, 透射光强的变化率之差为

$$\frac{I_+ - I_{T_0}}{I_{T_0}} - \frac{I_- - I_{T_0}}{I_{T_0}} = \alpha_0 L \frac{N_+ - N_-}{N_s} = \frac{\alpha_0 L}{N_s} \frac{(N_+ - N_-)_0}{\sqrt{4\pi D_s(t+t_0)}} \exp\left[-\frac{x^2}{4D_s(t+t_0)}\right].$$

$$\exp\left[-\left(\frac{2}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_r}\right)t\right] \quad (6)$$

式(6)就是 $N_+ - N_-$ 随时间退化规律的一般表达式. 式中除包含 $\exp\left[-\left(\frac{2}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_r}\right)t\right]$ 因子外, $\exp\left[-\frac{x^2}{4D_s(t+t_0)}\right]$ 和 $\frac{1}{\sqrt{4\pi D_s(t+t_0)}}$ 都是含时间 t 的因子, 它们又都含有 D_s , 说明了它们都来源于电子自旋扩散, 前者减慢了 $N_+ - N_-$ 随时间退化, 而后者加速 $N_+ - N_-$ 随时间退化. 前者和探测光斑中心与注入电子自旋波包中心的距离 x 有关, x 越大则这一项的作用就越显著. 当 $x = 0$ 时, $\exp\left[-\frac{x^2}{4D_s(t+t_0)}\right] = 1$ 为不随时间变化的常量, 则它对 $N_+ - N_-$ 退化率无影响. 这表明可以通过调整泵浦光斑与探测光斑中心位置, 使之中心相互重合, 当探测光斑远小于泵浦光斑时, $\exp\left[-\frac{x^2}{4D_s(t+t_0)}\right]$ 对 $N_+ - N_-$ 的退化率没有影响.

那么, 什么条件下可以消除 $\frac{1}{\sqrt{4\pi D_s(t+t_0)}}$ 因子的作用呢? 为此假定将此因子对自旋弛豫时间测量值所引起的偏差控制在范围内, 则令

$$\exp\left[-\left(\frac{2}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_r}\right)\tau_s\right] = \frac{\sqrt{4\pi D_s t_0}}{\sqrt{4\pi D_s(0.00\tau_s + t_0)}} \cdot \exp\left[-\left(\frac{2}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_r}\right) \times 0.99\tau_s\right] \quad (7)$$

由此可解出 t_0 . 设样品 $\tau_r = 400 \text{ ps}$, $\tau_s = 80 \text{ ps}$ ^[12], $D_s = 127 \text{ cm}^2/\text{s}$ ^[16], 则可算得 $\tau_0 = 1794 \text{ ps}$, 自旋波包的初始宽度(即泵浦光斑宽度) $\omega_0 = 12 \mu\text{m}$. 这说明了, 对于该样品欲将此因子对自旋弛豫时间测量值的影响控制在小于 1% 的范围, 泵浦光斑的最小宽度必需大于 $12 \mu\text{m}$. 对于一般的样品, 只要知道 τ_r , τ_s 和 D_s , 便可由式(7)算出泵浦光斑的最小宽度 ω_0 . 只要泵浦光斑宽度大于 ω_0 , 则此因子对自旋弛豫时间测量值引起的偏差将小于 1%.

3 结论

基于在不同的探测光斑位置所作的时间分辨的泵浦-探测光谱, 结合理论分析, 研究了电子自旋退极化的动力学过程, 得到了由扩散产生的影响电子自旋退布居速率的两个因子, 提出了自旋弛豫时间测量实验中消除扩散因素影响的条件: 1) 通过调节实验光路确保泵浦光斑和探测光斑中心重叠; 2) 泵浦光斑尺寸足够大. 简而言之, 泵浦光斑尺寸越大, 探测光斑中心越接近于泵浦光斑的中心, 则扩散对自旋弛豫时间测量值所造成的影响就越小. 这些结

果对合理设计实验光路,精确测量电子自旋弛豫时间具有参考价值.

参考文献

- [1] DATTA S, DAS B. Electronic analog of the electro-optic modulator[J]. *Applied Physics Letters*, 1990, **56**(7): 665-667.
- [2] ZUTIC I, FABAIN J, SARMA S D. Spintronics: Fundamentals and applications [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2004, **76**(2): 323-410.
- [3] YU Hua-liang, ZHANG Xiu-min, WANG Peng-fei, *et al.* Diffusion transport of electron spins in bulk n-GaAs studied by circularly dichromatic absorption difference spectroscopy of spin gratings[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, **94**(5): 202109-1-202109-3.
- [4] HAGELE D, OESTREICH M, RUHLE W W, *et al.* Spin transport in GaAs[J]. *Applied Physics Letters*, 1998, **73**(11): 1580-1582.
- [5] 施敏. 半导体器件物理与工艺[M]. 赵鹤鸣,钱敏,黄秋萍,译, 2版,苏州:苏州大学出版社,2002, 12: 323-512.
- [6] TACKEUCHI A, MUTO S, INATA T, *et al.* Direct observation of picosecond spin relaxation of excitons in GaAs/AlGaAs quantum wells using spin-dependent optical nonlinearity[J]. *Applied Physics Letters*, 1990, **56**(22): 2213-2215.
- [7] BRITTON R S, GREVATT T, MALINOWSK A, *et al.* Room temperature spin relaxation in GaAs/AlGaAs multiple quantum wells[J]. *Applied Physics Letters*, 1998, **73**(15): 2140-2142.
- [8] KIKKAWA J M, AWSCHALOM D D. Resonant Spin Amplification in n-type GaAs[J]. *Physical Review Letters*, 1998, **80**(19): 4313-4316.
- [9] TACKEUCHI A, MUTO S, INATA S, *et al.* Direct observation of picosecond spin relaxation of excitons in GaAs/AlGaAs quantum wells using spin-dependent optical nonlinearity[J]. *Applied Physics Letters*, 1990, **56**(22): 2213-2215.
- [10] SONG P H, KIM K W. Spin relaxation of conduction electrons in bulk III-V semiconductors[J]. *Physical Review B*, 2002, **66**(3): 035207-035213.
- [11] YU Hua-liang, ZHANG Xiu-ming, TENG Li-hua, *et al.* Study of electron transport in intrinsic GaAs quantum wells by time- and space-resolved absorption spectroscopy[J]. *Acta Physica Sinica*, 2009, **58**(5): 3543-3547.
余华梁,张秀敏,腾利华,等. 本征 GaAs 量子阱中电子自旋扩散输运的时-空分辨吸收光谱研究[J]. 物理学报, 2009, **58**(5): 3543-3547.
- [12] SHUN Feng-wei, DENG Li, SHOU Qian, *et al.* Femtosecond spectral studies of electron spin injection and relaxation in AlGaAs/GaAs MQW[J]. *Acta Physica Sinica*, 2004, **53**(9): 3196-3199.
孙丰伟,邓莉,寿倩,等. 量子阱中电子自旋注入及弛豫的飞秒光谱研究[J]. 物理学报, 2004, **53**(9): 3196-3199.
- [13] DYAKONOV M I, PEREL V I, BERKOVITS V L. Optical effects due to polarization of nuclei in semiconductors[J]. *Zhurnal Eksperimentalnoi i Teoreticheskoi Fiziki*, 1975, **40**(5): 950-952.
- [14] DYAKONOV M I, KACHOROVSKI V Y, Spin relaxation of two-dimensional electrons in noncentrosymmetric semiconductors [J]. *Soviet Physics Semiconductors-ussr*, 1986, **20**(1): 110-112.
- [15] LAI T S, LIU L N, SHOU Q, *et al.* Elliptically polarized pump-probe spectroscopy and its application to observation of electron-spin relaxation in GaAs quantum wells[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, **85**(18): 4040-4042.
- [16] CAMERON A R, RIBLET P, MILLER A. Spin gratings and the measurement of electron drift mobility in multiple quantum well semiconductors[J]. *Physical Review Letters*, 1996, **76**(25): 4793-4796.