2009年10月

Vol. 30 No. 5 Oct., 2009

文章编号:1000-7032(2009)05-0668-05

InAs/GaAs 单量子点中电子/空穴自旋弛豫

李文生1,孙宝权2*

(1. 通辽职业学院 生物化工系,内蒙古 通辽 028000; 2. 中国科学院半导体研究所 超晶格国家重点实验室,北京 100083)

摘要:利用分子束外延制备了三种类型量子点样品,它们分别是:未掺杂样品、n型Si调制掺杂样品和 p型Be调制掺杂样品。在5K温度下,采用共聚焦显微镜系统,测量了单量子点的光致发光谱和时间分辨光谱,研究了单量子点中三种类型激子(本征激子、负电荷激子和正电荷激子)的电子/空穴自旋翻转时间。它们的自旋翻转时间常数分别为:本征激子的自旋翻转时间约16 ns,正电荷激子中电子的自旋翻转时间约2 ns,负电荷激子中空穴的自旋翻转时间约50 ps。

关 键 词:量子点;激子;自旋翻转时间 中图分类号:0472.3 **PACS**:73.21.La;78.55.Cr

1引言

近年来, 半导体量子点中电子/空穴自旋弛 豫机制的研究引起研究者的广泛兴趣。量子点是 一种三维受限量子体系,其电子/空穴的能级是 分立的, 目没有对应的能量色散关系, 从而减慢 了电子/空穴的自旋弛豫过程。这一物理机制不 同于二维或三维体系的半导体材料,其电子/空 穴的自旋弛豫时间比较短^[1~3]。较长的自旋弛豫 时间使得量子点在自旋电子学领域和量子信息领 域具有潜在的应用价值^[4,5]。目前,关于量子点 中电子/空穴自旋弛豫的研究已有一些报 道^[1,6~10]。然而,所报道的自旋弛豫时间相差比 较大,从几十皮秒到几十纳秒^[1,9,10],其中可能的 物理原因来自于样品均匀性,量子点光谱的谱线 宽度和光激发条件等。相对于单量子点光谱特 性,量子点系综的测量结果对识别本征的电子/ 空穴自旋弛豫过程应产生一定的影响。为识别量 子点中激子、电子或空穴的自旋翻转过程,人们研 究了 n 型或 p 型掺杂量子点样品^[11,12]。然而, 这 些研究都是在量子点系综条件下测量的。而对于 单量子点体系,本征激子和电荷激子中的电子/ 空穴自旋翻转时间的研究是十分重要且有意义的 工作。在本篇论文中,利用分子束外延制备了三 **PACC**: 7320D; 7855E 文献标识码: A

种类型量子点样品,即未掺杂样品、n型Si调制掺 杂样品和p型Be调制掺杂样品。在5K温度下, 采用共聚焦显微镜系统,测量了单量子点的光致 发光(PL)谱和时间分辨光谱,研究了单量子点 中三种类型激子(本征激子、负电荷激子和正电 荷激子)中电子/空穴自旋翻转时间。得到它们 的自旋翻转时间常数分别为:本征激子(电子-空 穴对)的自旋翻转时间约16 ns,正电荷激子(1 个电子/2个空穴)中电子的自旋翻转时间约2 ns,负电荷激子(2个电子/1个空穴)中空穴的自 旋翻转时间约50 ps。

2 实 验

我们研究的三种单量子点样品分别为未掺杂 的本征样品、n型和 p 型调制掺杂样品。量子点 样品由分子束外延的方法制备。所用的化学元素 分别为镓源(Ga)、砷源(As)、铝源(Al)、铟(In)、 硅源(Si)和铍源(Be)。生长样品的衬底为半绝缘 GaAs。生长样品时衬底温度为 580 °C (GaAs/ Al_{0.5}Ga_{0.5}As)和450 °C (InAs 量子点)。在生长样 品时,相应的化学源打开,入射到 GaAs 衬底上进 行化学反应而形成。样品的生长顺序是: 400 nm 的 GaAs 层, 100 nm Al_{0.5}Ga_{0.5} As 层, 0.36 nm GaAs 掺杂层,Si 掺杂浓度~ 1.5×10¹⁶ cm⁻³, 或

作者简介:李文生(1959-),男,通辽市人,主要从事有机、无机材料发光的研究。

E-mail: liwensheng20069@126.com

收稿日期: 2009-01-25;修订日期: 2009-06-24

基金项目:国家自然科学基金(60676054)资助项目。

^{*:} 通讯联系人; E-mail: bqsun@ semi. ac. cn, Tel: (010)82304870-801

Be 掺杂浓度~1×10¹⁷ cm⁻³,10 nm 的 GaAs 层. 2.35 单层 (ML)的 InAs 量子点层, 其生长速率 为 0.001 ML/s, 200 nm GaAs 覆盖层。对应本征 的量子点样品,生长时不进行 Si 或 Be 的掺杂。 按照这种方法制备的量子点样品,量子点的密度 非常低,每平方微米小于一个量子点^[13]。因此, 在光谱测量实验中,不需要在样品上制备小的台 面或在金属镀层上开透光小孔来分离单个量子 点。实验中,样品放在氦循环制冷的低温系统 中,实验的温度为5K。掺钛蓝宝石脉冲激光器 作为激发光源,激光波长为750 nm,脉冲重复频 率为82 MHz,脉冲宽度为200 fs。扫描共聚焦显 微镜(数值孔径0.5)可分辨单个量子点,量子点 的发光光谱由共聚焦显微镜收集,所用的单色仪 焦距为0.5 m, 探测器为Si-CCD。时间分辨PL 强度的测量采用时间关联单光子计数技术完成, 其时间分辨率为400 ps。对测量的发光强度随时 间的衰变曲线作数学上的卷积计算,可以得到样 品的自旋弛豫的时间常数。对于偏振 PL 和偏振 光谱的时间分辨测量,激发光设定为右圆偏振光 $(\sigma^+, 通过 \lambda/4 来实现), 发光光谱的检测采用组$ $合 \lambda/4$ 和线性偏振片来完成。

3 结果与讨论

图 1 为本征、n 型掺杂和 p 型掺杂单量子点 样品的 PL 光谱,它们的光谱非常窄,对应光谱半 高宽度约 0.05 nm,具有典型的单量子点发光光 谱特征。为了研究这三种类型样品中电子/空穴 的自旋翻转时间,每种类型样品都选择了几个单 量子点来测量它们对应的时间分辨光谱,其中典 型的三组实验结果显示于图 2,纵坐标为对数表



Fig. 1 Measured PL spectra of three-type of single quantum dots



- 图 2 测量的圆偏振 平强度随时间的变化关系:(a)未 掺杂的量子点样品;(c)p型掺杂的量子点样品。实线为卷积计算得 到的拟合曲线
- Fig. 2 Measured polarization PL intensity vs. decay time:(a) undoping QD sample. (b) n-doping QD sample and (c) p-doping QD sample. The solid lines are fitting results by the convolution calculations.

示。测量的实验条件是:激发光为 σ^* ,激光波长为 750 nm,分别测量单量子点发光光谱的 σ^* 偏振特性,其中图 2(a)为未掺杂样品的测量结果,图 2(b)为 n 型掺杂的结果,图 2(c)为 p 型掺杂结果。三种样品的 σ^* 偏振光谱时间常数明显不同,反应电子/空穴的自旋翻转时间的差别。为了得到它们在不同发光偏振态的时间常数,我们对测量的发光强度随时间的衰变曲线作数学上的卷积计算,得到的时间常数分别为:未掺杂量子

点, σ^{+} 的寿命为0.76 ns, σ^{-} 的寿命为0.80 ns, n 型掺杂的量子点, σ^{+} 的寿命为0.9 ns, σ^{-} 的寿命为 1.3 ns。p 型掺杂的量子点, σ^{+} 的寿命为0.48 ns, σ^{-} 的寿命为0.52 ns。图中振荡的细线为实验测 量数据,光滑的实线为利用数学卷积拟合的结 果。这里我们清楚地看到,对应未掺杂的样品图 2(a),测量的 σ^{+} 成分随时间的衰变部分近似平 行的,说明激子的自旋弛豫时间远大于载流子的 复合寿命~0.8 ns。对应 n 掺杂样品的图 2(b), 测量的 σ^{+} 成分随时间的衰变部分很快重合,说 明空穴自旋翻转时间比较小。对应 p 掺杂样品的 图 2(c),测量的 σ^{+} 成分随时间的衰变部分延长 较长的时间,说明电子具有较长的自旋翻转时 间。为了定量得到偏振度随时间的依赖关系,圆 偏振光的偏振度定义为:

 $P_{e} = [I(\sigma^{+}) - I(\sigma^{-})]/[I(\sigma^{+}) + I(\sigma^{-})]$ 这里 $I(\sigma^{+}), I(\sigma^{-})$ 分别为测量的右圆偏振光和 左圆偏振光成分。计算结果如图 3 所示,在计算 P_{e} 时,我们使用拟合的曲线来计算,以减少计算 结果的较大波动。然而两者的计算结果是一致 的。图 3 计算的圆偏振度结果显示:对于未掺杂 的样品,存在两个时间常数,一个是非常快的 15 ps,而另一个为较长的时间常数 16 ns。根据光吸 收和跃迁的偏振选择定则^[14],实验中我们选择 的激发光为 σ^{+} ,激光波长为 750 nm,光生电子/ 空穴首先在 GaAs 中产生,然后电子/空穴经过能 量的弛豫被量子点俘获,最后电子-空穴对复合产



图 3 计算的圆偏振度成分随时间的变化,其中激子自旋 弛豫时间常数为 16 ns (未掺杂样品),电子自旋翻 转时间为 2 ns (p型掺杂样品),空穴自旋翻转时 间为 50 ps (n型掺杂样品)。

Fig. 3 Calculated circular polarization degree vs. decay time. The exciton spin relaxation time is 16 ns, the electron spin-flip time is 2 ns and the hole spin-flip time is 50 ps. 生发光光谱。光生电子/空穴初始的最大圆偏振 度为 50%,这与实验测量结果比较接近,即在电 子/空穴的初始积累过程中,电子/空穴的翻转时 间约15 ps。而后电子/空穴弛豫到各自的带底. 它们的复合寿命约0.8 ns,但电子/空穴同时自 旋翻转时间约16 ns。说明在本征的量子点中, 激子具有相当长的自旋弛豫时间,其保持的偏振 度~30%。这个实验结果也说明,电子/空穴在 0.31 eV 能量弛豫过程中(从1.65~1.34 eV), 损失约20%的自旋信息。这里需要说明,在激子 (电子-空穴对)的复合中,只有激子的角动量为 ±1时,它才能发射光子。若在激子系统中,只 有电子或空穴自旋翻转,则其激子的角动量为 ±2, 这个激子态不能与光子耦合发射光子, 它 是一种暗激子。当电子/空穴自旋同时翻转时, 激子的角动量由+1变为-1,即发射光子的偏 振态由 σ^+ 变为 σ^- 。对于 n 型掺杂的量子点样 品,由于掺杂的电子首先占据了量子点的电子能 级,因此,测量的激子自旋弛豫过程,即光谱的 偏振态从 σ^+ 变为 σ^- ,主要是空穴自旋的翻转问 题。图3测量的结果表明,空穴的自旋翻转时间 ~ 50 ps。对于 p 型掺杂的量子点样品,由于掺 杂的空穴首先占据了量子点的空穴能级,因此, 测量的激子自旋弛豫过程,即光谱的偏振态从 σ^+ 变为 σ^- ,主要是电子的自旋翻转问题。图 3 测量的结果表明,电子的自旋翻转时间~2 ns。 因此,通过以上三种不同类型的量子点测量,得到



- 图4 显示(a)本征量子点,(b)n型掺杂量子点和(c)p 型掺杂量子点中电子/空穴的自旋翻转示意图。箭 头表示电子/空穴的自旋取向。(a)为电子/空穴同 时翻转过程,(b)为空穴自旋取向翻转,(c)为电子 自旋取向翻转
- Fig. 4 Schematic diagram of the electron and the hole spinflips processes. (a) electron- and hole-spin flips simultaneously, (b) hole spin-flips and (c) electron spin-flips.

电子/空穴自旋翻转时间常数。图4显示本征量 子点、n型掺杂量子点和 p 型掺杂量子点样品中 电子/空穴的自旋翻转示意图,箭头表示电子/空 穴的自旋取向。图4(a)为电子/空穴同时翻转, 发光偏振态经历了从 σ^+ 到 σ^- 的过程;图4(b) 为掺杂的电子首先占据电子的基态能级,空穴自 旋取向决定发光的偏振性,图4(c)为掺杂的空穴 首先占据空穴的基态能级,电子自旋取向决定发 光的偏振性。

4 结 论

采用 PL 谱和时间分辨光谱测量,研究了单量子点中三种类型激子(本征激子、负电荷激子和正电荷激子)的电子/空穴自旋翻转时间。得到它们的自旋翻转时间常数分别为:本征激子(电子/空穴同时翻转)自旋寿命是16 ns,正电荷激子中电子的自旋翻转时间是2 ns,负电荷激子中空穴的自旋翻转时间是50 ps。

参考文献:

- [1] Paillard M, Marie X, Renucci P, et al. Spin relaxation quenching in semiconductor quantum dots [J]. Phys. Rev. Lett., 2001, 86(8):1634-1637.
- [2] Maialle M Z, de Andrada Silva E A, Sham L J. Exciton spin dynamics in quantum wells [J]. Phys. Rev. B, 1993, 47 (23):15776-15786.
- [3] Gammon D, Snow E S, Shanabrook B V, et al. Homogeneous linewidths in the optical spectrum of a single gallium arsenide quantum dot [J]. Science, 1996, 273(5271):87-90.
- [4] Loss D, Divinvenzo D P. Quantum computation with quantum dots [J]. Phys. Rev. A, 1998, 57(1):120-126.
- [5] Awschalom D D, Loss D, Samarth N. Semiconductor Spintronics and Quantum Computing [M]. New York: Springer, 2002.
- [6] Gammon D, Snow E S, Shanabrook B V, et al. Fine structure splitting in the optical spectra of single GaAs quantum dots
 [J]. Phys. Rev. Lett., 1996, 76(16):3005-3008.
- [7] Tsitsishvili E, Baltz R V, Kalt H. Temperature dependence of polarization relaxation in semiconductor quantum dots [J].
 Phys. Rev. B, 2002, 66(16):161405-1-4.
- [8] Gotoh H, Ando H, Kamada H, et al. Spin relaxation of excitons in zero-dimensional InGaAs quantum disks [J]. Appl. Phys. Lett., 1998, 72(11):1341-1343.
- [9] Lenihan A S, Gurudev Dutt M V, Steel D G, et al. Raman coherence beats from entangled polarization eigenstates in InAs quantum dots [J]. Phys. Rev. Lett., 2002, 88(11):223601-1-4.
- [10] Favero I, Cassabois G, Voisin C, et al. Fast exciton spin relaxation in single quantum dots [J]. Phys. Rev. B, 2005, 71 (23):233304-1-4.
- [11] Cortez S, Krebs O, Laurent S, et al. Optically drive spin memory in n-doped InAs-GaAs quantum dots [J]. Phys. Rev. Lett., 2002, 89(20):207401-14.
- [12] Gundogdu K, Hall K C, Koerperick E J, et al. Electron and hole spin dynamics in semiconductor quantum dots [J]. Appl. Phys. Lett., 2005, 86(11):113111-1-3.
- [13] Huang S S, Niu Z C, Ni H Q, et al. Fabrication of ultra-low density and long-wavelength emission InAs quantum dots [J]. J. Crystal Growth, 2007, 301-302:751-754.
- [14] Kalevich V K, Paillard M, Kavokin K V, et al. Spin redistribution due to Pauli blocking in quantum dots [J]. Phys. Rev. B, 2001, 64(4):045309-1-7.

Electron- and Hole-spin Relaxations in InAs/GaAs Single Quantum Dots

LI Wen-sheng¹, SUN Bao-quan²

Department of Biology and Chemical Engineering, Tongliao Professional Education College, Tongliao 028000, China;
 NLSM, Institute of Semiconductors, CAS, Beijing 100083, China)

Abstract: Quantum dots (QDs) samples studied in the experiment were grown by molecular-beam epitaxy on a semi-insulating GaAs substrate. They are undoping QD sample, n-doping QD sample and p-doping QD sample. The samples grown in sequence are: 400 nm GaAs layer, 100 nm Al_{0.5}Ga_{0.5}As layer, 0.36 nm GaAs layer with the Si-doping $(1.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3})$, or Be-doping $(1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3})$, 10 nm GaAs layer, 2.35 monolayers (ML) InAs at a growth rate of 0.001 ML/s,200 nm GaAs layer. For undoping QD sample, there is a non Si or Be doped 0.36 nm GaAs layer. The sample has an ultralow density of the QDs. Therefore, we can isolate single QDs without the use of the nanoscaled masks or mesas. In the experiment the sample was cooled to 5 K and a Ti; sapphire laser operating at 750 nm is used as an excitation source. The scanning confocal microscopy with an objective (NA:0.5) is used to spatially resolve single QDs. The polarized photoluminescence (PL) and time-resolved PL measurements were carried out by time-correlated single-photon counting setup. The excitation light is a right circular polarization light. The polarization PL and time-resolved PL emissions were analyzed by a $\lambda/4$ and $\lambda/2$ wave plate and a linear polarizer to distinguish different polarization components. All the experiments were performed at low excitation power, which ensures the luminescence working in the single photon emission mode. The main conclusions were given; (1) The exciton-spin relaxation time for undoping QD sample is about 16 ns; (2) The electron spin-flip time is about 2 ns for p-doping QD sample; (3) The hole spin-flip time is about 50 ps for n-doping QD sample.

 Key words:
 QD; exciton; spin-flip time

 CLC number:
 0472.3
 PACS:
 73.21. La;
 78.55. Cr
 PACC:
 7320D;
 7855E
 Document code:
 A