

# Kapitel 1

## Einleitung

Der quantenmechanische Freiheitsgrad Spin und seine Ausnutzung für die Informationsverarbeitung steht in der letzten Dekade an einer prominenten Stelle der Forschung. In der konventionellen Elektronik werden Zustände durch An- oder Abwesenheit elektrischer Ladungen dargestellt, Operationen sind mit elektrischen Strömen verknüpft. Trotz erheblicher und bislang zumeist erfolgreicher Bemühungen zur Verringerung von Baugrößen und Rechenzeiten stößt die konventionelle Elektronik allmählich an physikalische Grenzen. Eine dieser Grenzen bestand in der Informationsdichte auf magnetischen Speichermedien (Festplatten) mit konventionellen Leseköpfen, die sehr erfolgreiche Lösung in der Ausnutzung des Riesen-Magneto-Widerstands (giant magneto-resistance). Alle heutigen Festplatten verdanken ihre hohe Informationsdichte diesem spinabhängigen Effekt. Ein verwandter Effekt, der magnetische Tunnelwiderstand, wird in magnetischen Speicherbausteinen (MRAM, magnetic RAM) ausgenutzt, wodurch MRAM bei ähnlich schnellen Schreib- und Lesezeiten wie konventioneller Arbeitsspeicher seine Information auch bei ausgeschalteter Versorgungsspannung erhält. Nach anfänglichen Problemen ist diese Technologie inzwischen über das Prototypenstadium hinaus in ersten Serien erhältlich.

Abgesehen von diesen semiklassischen Speicheranwendungen ist die Ausnutzung des Spins insbesondere für funktionelle Elemente interessant, wie etwa den 1990 von Datta und Das vorgeschlagenen Spin-Feldeffekt-Transistor [1]. Eine Vielzahl von Ideen und Ansätzen bilden in dieser Hinsicht das Gebiet der Spintronik [2, 3], der spinbasierten Elektronik, in deren Mittelpunkt das Spin-Qubit steht. Das Qubit oder Quanten-Bit beinhaltet dabei nicht nur die binären Zustände  $|0\rangle$  und  $|1\rangle$ , sondern auch den gesamten Raum der Mischzustände  $|\Psi\rangle = a|0\rangle + b|1\rangle$ . Damit ließen sich quantenmechanische Rechenoperationen durchführen, die den konventionellen rein binären Operationen weit überlegen wären [4]. Die Realisation von Qubits ist beispielsweise möglich durch Anregung kalter Ionen in Ionenfallen mit Laserpulsen [5],

in Form von magnetischen Flussquanten oder der Anzahl von Cooper-Paaren in supraleitenden Strukturen mit Josephson-Kontakten [6] oder durch den Kernspin in Molekülen, der über Kernspinresonanzexperimente manipuliert werden kann. Letzterer Ansatz hält bislang der funktionellen Rekord mit der Faktorisierung der Zahl 15 [7], die Skalierbarkeit ist aber recht eingeschränkt. Quantenpunkte in Halbleitern [8, 9] stellen hingegen einen vielversprechenden Weg dar, konventionelle (halbleiterbasierte) Elektronik und Spintronik zu vereinen.

Für spinbasierte funktionelle Anwendungen muss eine Reihe von Schritten erfolgreich absolviert werden: Ein einzelner Spin oder ein Spinensemble muss präpariert werden, eine ausreichend lange Lebensdauer für mögliche Operationen aufweisen und innerhalb dieser Lebensdauer gezielt beeinflusst und anschließend ausgelesen werden können. Für den ersten Schritt, der Präparation, bietet sich in vielen Systemen die Injektion eines Spin(ensembles) aus einer magnetischen Schicht mit stark spinabhängiger Zustandsdichte heraus an. Vielfältige Untersuchungen wurden und werden unternommen zur Spininjektion aus ferromagnetischen Metallen in paramagnetische Metalle [10, 11], Supraleiter [12], Kohlenstoff-Nanoröhrchen [13] und Halbleiter [14–17].

Während die Spininjektion aus einem ferromagnetischen Metall in einen Halbleiter aufgrund der hohen Curie-Temperatur auch bei Raumtemperatur möglich ist, wird ihre Effizienz durch die erheblichen Unterschiede in der Leitfähigkeit stark eingeschränkt [18] und lässt sich nur über Tunnelprozesse durch maßgeschneiderte Schottky-Barrieren erhöhen [19, 20]. Eine in letzter Zeit intensiv untersuchte Alternative zu reinen ferromagnetischen Metallen sind Heusler-Legierungen, die als Halbmetall für den Majoritätsspin metallische und für den Minoritätsspin Eigenschaften eines Halbleiters besitzen und dadurch vollständige Spinpolarisation erreichen [21].

Das Problem der Grenzschicht Metall-Halbleiter lässt sich insbesondere auch umgehen, wenn als spinausrichtende Schicht ebenfalls ein Halbleitermaterial verwendet wird. Hier hat sich die Gruppe der verdünnten magnetischen Halbleiter [22] einen einzigartigen Stellenwert verschafft, da gewöhnliche nichtmagnetische Halbleiter wie GaAs oder ZnSe durch Einbringen eines geringen Anteils von  $\text{Mn}^{2+}$ -Ionen eine außergewöhnlich starke Magnetisierung in einem äußeren Magnetfeld zeigen.

Verdünnte magnetische Halbleiter auf Basis von III-V-Materialien wie (Ga,Mn)As weisen bei tiefen Temperaturen Ferromagnetismus auf [23, 24], sind aber aufgrund ihrer Komposition stark p-dotiert, sodass sie meist zur Injektion spinpolarisierter Löcher benutzt werden. Da Löcher aber zu schneller Spinrelaxation neigen, ist die Injektionseffizienz damit erheblich eingeschränkt [25]. Eine Injektion von Elektronen mit langlebigerem Spin ist nur mit komplizierten Bandstrukturen möglich [26].

Mit semimagnetischen Halbleitern auf Basis von II-VI-Materialien wie (Zn,Mn)Se

---

hingegen nimmt man zwar eine stark eingeschränkte Möglichkeit des ferromagnetischen Verhaltens in Kauf, kann die Struktur jedoch beliebig dotieren, da Mangan beim Einbau in das Kristallgitter ebenso zweiwertig ist wie Zink. Damit kann die Spininjektion wahlweise wiederum elektrisch realisiert werden, indem Elektronen aus einem metallischen Kontakt durch den n-dotierten magnetischen Halbleiter driften [27–29]. Ladungsträgerpaare können in einem undotierten System aber auch durch optische Anregung mit geeigneter Wellenlänge direkt in der magnetischen Schicht erzeugt werden [30, 31] und von dort aus in die funktionale Schicht gelangen, also optisch injiziert werden. Allen angesprochenen Injektionsverfahren ist jedoch gemein, dass einer vollständigen Spinpopulation in der funktionellen Schicht eine Vielzahl von Relaxationsmechanismen im Wege steht und je nach Verfahren nur zwischen einigen wenigen Prozent und etwa 80 Prozent Injektionseffizienz erzielt wurden.

### **Gliederung der Arbeit**

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich in diesem Kontext mit der Spininjektion aus paramagnetischen (Zn,Mn)Se-Schichten in GaAs-Quantenfilme. Die Arbeit entstand im Teilprojekt A2.3 des an der Universität Karlsruhe neu eingerichteten DFG-Forschungszentrums „Centrum für Funktionelle Nanostrukturen“ (CFN).

Die Arbeit gliedert sich in zwei Hauptteile. Der erste Teil handelt von der Erzeugung von Spinpopulationen durch zirkular polarisierte optische Anregung und durch spinabhängige Zustandsdichten in verdünnten magnetischen Halbleitern. Dazu wurden am Materialsystem  $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  in Abhängigkeit vom Mangangehalt  $x$  ausführliche Messungen durchgeführt, die einerseits das Wachstum und den neu eingerichteten Aufbau für magneto-optische Messungen charakterisieren und andererseits Einblicke in die besonderen Eigenschaften des Materials und seine Eignung für die Experimente zur Spininjektion bieten. Da für eine erfolgreiche Spinpolarisation in dem Material eine Relaxation der Spins in das energetisch günstigere Niveau notwendig ist, wird anschließend ein Überblick über die verschiedenen und vielfältigen Mechanismen zur Spinrelaxation gegeben.

Der zweite Teil der Arbeit ist dann der eigentlichen Spininjektion gewidmet. Entsprechend der oben geschilderten Möglichkeiten des II-VI-basierten verdünnten magnetischen Halbleiters (Zn,Mn)Se werden sowohl optische als auch elektrische Spininjektion vorgestellt. Die auf die jeweilige Weise erzeugten spinpolarisierten Ladungsträger werden in nichtmagnetische GaAs-Quantenfilme injiziert und aus der zirkularen Polarisation der beobachteten Photo- oder Elektrolumineszenz werden Rückschlüsse auf die Injektionseffizienz und die beteiligten Prozesse zur Spinrelaxation gezogen.

Nach der Zusammenfassung folgen im Anhang einige Konventionen zur Notation und eine Beschreibung des neu errichteten und für die Experimente verwendeten Versuchsaufbaus.



# Kapitel 2

## Erzeugung von Spinpopulationen

Bevor man quantenmechanische Operationen unter Ausnutzung des quantenmechanischen Freiheitsgrades Spin, mit einzelnen Spins oder Spinensembles, durchführen kann, muss zunächst ein möglichst reiner Spinzustand beziehungsweise eine reine Spinpopulation präpariert werden. In anderen Worten, es muss ein Ungleichgewicht der Spinpolarisation erzeugt werden. In diesem Kapitel sollen dazu die Methoden der Optischen Orientierung und der Magneto-Polarisation diskutiert werden. Zuvor seien als kurze Übersicht beide Methoden sowie einige wichtige Begriffe erläutert.

**Optische Orientierung** beschreibt ein auf optischem Wege erzeugtes Ungleichgewicht der spinabhängigen Ladungsträgerdichte. Wird ein Halbleiter mit zirkular polarisiertem Licht angeregt, sind die erzeugten Ladungsträger aufgrund der Drehimpulserhaltung ebenfalls spinpolarisiert.

Ein Ungleichgewicht der Spinpopulation lässt sich auch durch eine spinabhängige Zustandsdichte erzeugen, wie sie beispielsweise in semimagnetischen Halbleitern bereits durch Anlegen eines relativ schwachen äußeren Magnetfeldes erzielt werden kann. Im Gegensatz zur optischen Orientierung spricht man in diesem Fall von **Magneto-Polarisation**. Erzeugt man Ladungsträger in dieser Schicht durch optische Anregung und lässt diese spinpolarisierten Ladungsträger in eine angrenzende nicht-magnetische Schicht gelangen, spricht man von **optischer Injektion**. Im Gegensatz dazu steht die **elektrische Injektion**, bei der Ladungsträger (Elektronen oder Löcher) durch ein angelegtes elektrisches Feld aus einem dotierten semimagnetischen Halbleiter in eine nicht-magnetische Schicht transportiert werden. Beide Möglichkeiten werden in Kapitel 3 behandelt.

In diesem Kapitel wird zunächst der Mechanismus der optischen Orientierung anhand der typischen Zinkblende-Bandstruktur besprochen, wie sie eine Vielzahl von Halbleitern und insbesondere die dieser Arbeit zugrunde liegenden Materialien auf-

weisen. Anhand der Wellenfunktionen der relevanten Bänder werden Auswahlregeln hergeleitet und gezeigt, dass sich mit optischer Orientierung nur unter bestimmten Voraussetzungen eine vollständige Spinpolarisation erzeugen lässt.

Der zweite Teil dieses Kapitels beschäftigt sich mit der Magneto-Polarisation und der Gruppe der semimagnetischen Halbleiter. Zu einer theoretischen Betrachtung anhand des Hamilton-Operators im Magnetfeld und der Auswirkung auf die Wellenfunktionen dient als experimentelles Beispiel zunächst der diamagnetische (etwas unkorrekt oft „unmagnetisch“ genannt) Halbleiter ZnSe sowie sein Verhalten im Magnetfeld. Davon ausgehend wird durch Einbau eines Mangananteils  $x$  der semimagnetische Halbleiter  $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  mit seinen Eigenschaften sowohl in Theorie als auch anhand ausgiebiger Messungen besprochen.

## 2.1 Optische Orientierung

Eine Möglichkeit, spinpolarisierte Ladungsträger in einem Halbleiter zu erzeugen, ist die Absorption von zirkular polarisiertem Licht [32]. Alfred Kastler erhielt bereits 1966 den Nobelpreis für Physik „für die Entdeckung und Entwicklung optischer Methoden zur Untersuchung Hertzscher Resonanzen in Atomen“ [33, 34]. Kastler hatte durch Anregung mit zirkular polarisiertem Licht gezielt ein Ungleichgewicht von spinpolarisierten Ladungsträgern in den aufgespaltenen Zeeman-Niveaus von Quecksilber-Atomen in einem Magnetfeld erzeugt und durch magnetische Resonanz Spinrelaxation gemessen.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit sollen spinpolarisierte Ladungsträger in Halbleitermaterialien erzeugt und mit optischen Methoden detektiert werden. Abbildung 2.1 zeigt die vereinfachte Bandstruktur eines Halbleiters mit Zinkblendestruktur, wie zum Beispiel GaAs oder ZnSe, in der Nähe des  $\Gamma$ -Punktes bei  $k = 0$  im unverspannten Volumenmaterial. Das Leitungsband besitzt  $\Gamma_6$ -Symmetrie bei  $k = 0$  und entwickelt sich aus den s-Orbitalen mit den Zuständen  $|\frac{1}{2}, \pm\frac{1}{2}\rangle$ , wobei  $|J, J_z\rangle$  den Drehimpuls  $J$  und die z-Komponente  $J_z$  bezeichnen. Die Valenzbandzustände entwickeln sich aus dem p-Orbitalen und besitzen Symmetrie  $\Gamma_{15} = \Gamma_8 \oplus \Gamma_7$ . Entsprechend ihrer Drehimpuls-Quantenzahlen spalten sie auf in das Schwerloch-Band (heavy-hole,  $hh$ ) mit Symmetrie  $\Gamma_8$  und den Zuständen  $|\frac{3}{2}, \pm\frac{3}{2}\rangle$ , das Leichtloch-Band (light-hole,  $lh$ ),  $\Gamma_8$ ,  $|\frac{3}{2}, \pm\frac{1}{2}\rangle$  und das sogenannte SO-Band mit Symmetrie  $\Gamma_7$  und den Zuständen  $|\frac{1}{2}, \pm\frac{1}{2}\rangle$ . Aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung (SO: spin-orbit-interaction) spalten das  $\Gamma_7$ -Band und die beiden  $\Gamma_8$ -Bänder auf. Das SO-Band liegt bei  $k = 0$  um die Energie  $\Delta_{SO}$  unterhalb des Schwer- und Leichtlochbandes. Letztere beiden Namen ergeben sich aus den effektiven Massen in den Bändern am  $\Gamma$ -Punkt.

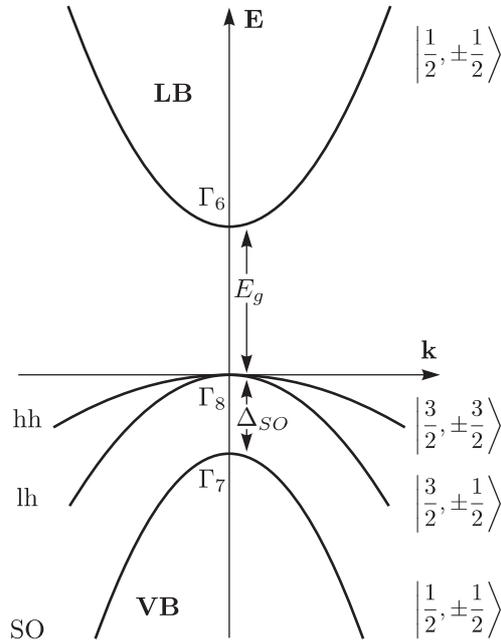


Abbildung 2.1: Bandstruktur (schematisch) in der Nähe des  $\Gamma$ -Punktes in einem Halbleiter mit Zinkblende-Struktur.  $E_g$  ist die Energie der Bandlücke. Das  $\Gamma_8$ -Valenzband ( $J = \frac{3}{2}$ ) und das  $\Gamma_7$ -Valenzband ( $J = \frac{1}{2}$ ) sind bei  $k = 0$  durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung um  $\Delta_{SO}$  aufgespalten.

Die Spin-Bahn-Aufspaltung beträgt in GaAs etwa  $\Delta_{SO} = 350$  meV und in ZnSe etwa  $\Delta_{SO} = 400$  meV [35] und ist damit so groß, dass gezielt nur die Übergänge aus den  $J = \frac{3}{2}$ -Zuständen optisch angeregt werden können und dem SO-Band im gesamten Temperaturbereich  $0 \leq T \leq RT$  bei der Rekombination von Ladungsträgern keine Bedeutung zukommt. Daher wird das SO-Band in die folgenden Betrachtungen zumeist nicht mit einbezogen.

Der Halbleiter werde nun mit Photonen der Energie  $\hbar\omega = E_g$  in  $-z$ -Richtung bestrahlt ( $+z$  ist die Wachstumsrichtung). Entsprechend der Helizität  $\sigma^\pm$  des einfallenden Lichts können Elektronen aus den Valenzbändern (Schwerloch- und Leichtlochband) in das Leitungsband angeregt werden. Abbildung 2.2 zeigt die möglichen Kanäle. Da Photonen einen Drehimpuls von  $\pm 1$  besitzen, sind aufgrund der Drehimpulserhaltung nur Übergänge mit  $\Delta J_z = \pm 1$  erlaubt. Wie aus der Abbildung ersichtlich ist, kann beispielsweise  $\sigma^+$ -polarisiertes Licht sowohl den Übergang eines Elektrons von  $|\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$  (Schwerloch) nach  $|\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$  anregen als auch den Übergang von  $|\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$  (Leichtloch) nach  $|\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\rangle$ .

### 2.1.1 Polarisationsgrad mit Valenzband-Entartung

Als Maß für eine Spinpopulation kann allgemein der Polarisationsgrad  $P$  definiert werden, der für eine Größe  $I_{\pm}$ , die mit zwei Spinzuständen  $|\pm\rangle$  verknüpft ist, definiert ist als

$$P = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} \quad (2.1)$$

Beispielsweise kann der Grad der zirkularen Polarisation der Photolumineszenz in Abhängigkeit der Intensität der  $\sigma^+$ - und  $\sigma^-$ -Komponenten des detektierten Signals und in Abhängigkeit der Polarisation der Anregung angegeben werden (CPD, circular polarization degree) als

$$CPD^+ = \frac{I_+^+ - I_-^+}{I_+^+ + I_-^+} \quad \text{und} \quad CPD^- = \frac{I_-^- - I_+^-}{I_-^- + I_+^-} \quad (2.2)$$

wobei  $I_{\pm}^{\pm}$  die Intensität der  $\sigma^{\pm}$ -Komponente der Photolumineszenz bei Anregung mit  $\sigma^{\pm}$  polarisiertem Licht ist. Um eine Aussage über den Polarisationsgrad der Elektronen aufgrund der polarisierten Anregung zu treffen, ist zusätzlich zu den möglichen Kanälen auch das entsprechende Matrixelement, die Übergangswahrscheinlichkeit wichtig.

Die Wellenfunktionen des  $\Gamma_6$ -Leitungsbandes schreiben sich in der Bloch-Notation:

$$\psi_{\mathbf{k}m}^c = u_m e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad (2.3)$$

mit  $m = \pm\frac{1}{2}$ . Die Blochamplituden  $u_m$  lassen sich entsprechend der s-Symmetrie des Leitungsbandes bei  $k = 0$  darstellen als  $u_{\pm\frac{1}{2}} = s \uparrow\downarrow$  [32, 36], woraus sich die Wellenfunktionen in  $|J, J_z\rangle$ -Schreibweise ergeben:

$$\begin{aligned} \left|\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\right\rangle_c &= |s \uparrow\rangle \\ \left|\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\right\rangle_c &= |s \downarrow\rangle \end{aligned} \quad (2.4)$$

Die Wellenfunktionen des  $\Gamma_8$ -Valenzbandes lauten bei  $k = 0$  gleichermaßen: