

InGaN 薄膜中电子自旋偏振弛豫的时间 分辨吸收光谱研究*

陈小雪 滕利华 刘晓东 黄绮雯 文锦辉 林位株 赖天树†

(中山大学光电材料与技术国家重点实验室 物理科学与工程技术学院 广州 510275)

(2007 年 7 月 30 日收到 2007 年 11 月 14 日收到修改稿)

采用飞秒时间分辨圆偏振光抽运-探测光谱对 $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}$ 薄膜的电子自旋注入和弛豫进行了研究. 获得初始自旋偏振度约为 0.2. 此结果支持在圆偏振光激发下, 重、轻空穴带的跃迁强度比为 3:1, 而不支持 1:1 或 1:0.94 的观点. 同时获得自旋偏振弛豫时间为 490 ± 70 ps, 定性分析了自旋弛豫机理, 认为 BAP 机理是电子自旋弛豫的主要机理.

关键词: 电子自旋, InGaN, 自旋极化, 自旋弛豫

PACC: 7847, 6740F, 7730, 7280E

1. 引 言

自旋电子学是一门研究电子自旋特性及其应用的学科^[1]. 自 1988 年 Baibich 等人发现巨磁阻效应以来^[2], 电子自旋在铁磁材料中的应用取得了巨大成功^[3]. 这使得人们希望利用当今广泛应用的半导体材料来制作半导体自旋功能器件^[4], 例如自旋发光二极管、自旋场效应管等, 实现途径之一是形成居里温度在室温之上的掺磁半导体材料, 并希望其具有长的自旋弛豫时间^[5]. 与其他半导体材料相比, GaN 的掺磁材料居里温度达到 370 K^[6], 并且由于其宽带隙和弱的自旋-轨道相互作用, 理论预言 GaN 及其相关的三元化合物, 例如 InGaN, 具有长的自旋弛豫时间^[7].

InGaN 材料现在被广泛应用于发光二极管、激光二极管和波长从紫外到可见光区域的垂直腔面发射激光器等领域, 并且是未来圆偏振光发光器件的潜在应用材料. 要获得高圆偏振度发光, 室温下的高效率自旋注入和长的电子自旋寿命是这些光功能器件的关键参数^[8]. Julier 等人^[9]报道了在 $\text{In}_{0.16}\text{Ga}_{0.84}\text{N}/\text{GaN}$ 多量子阱中, 在 10 K 的温度下自旋弛豫时间达到 100 ps. Nagahara 等人^[10]则报道了室温下 $\text{In}_{0.106}$

$\text{Ga}_{0.894}\text{N}$ 量子阱的自旋弛豫时间长达 220 ps. Buyanova 等人^[7]采用发光法研究了具有 GaMnN 注入层的 InGaN/GaN 量子阱的自旋偏振特性, 发现注入效率非常低, 认为是由于 Rashba 效应的缘故. 同时, Chen 等人^[11]和 Buyanova 等人^[12]分别研究了在强磁场的条件下, 具有 InGaN/GaMnN 结构的自旋 LED 的自旋偏振特性, 均观察到较低 (10%) 的荧光圆偏振度, 因此认为从 GaMnN 向 InGaN 的自旋注入效率低. 事实上, 荧光圆偏振度并不能总是正确反映自旋偏振度^[13]. 这就需要采用新的方法进一步研究自旋注入效率. 另外, Tackeuchi 等^[14]采用抽运-探测方法研究了 InGaN 体材料的自旋特性, 并没有观察到自旋偏振. 作者认为主要原因是材料中 In 组分失谐, 导致在探测光斑尺寸范围内, 不同样品点的带隙能量差达到 100 meV 以上, 使得重轻空穴带的激发强度相同. 作者还提到在圆偏振光激发下, 重、轻空穴带的电子跃迁强度比为 1:1, 而 Chen^[11]等认为此比例为 1:0.94, Nagahara 等^[10]则认为此比例为 3:1, 这反映了在基础理论研究方面尚存在争议, 有必要对此进行实验研究.

抽运-探测吸收光谱技术基于饱和吸收效应, 它直接反映导带载流子的布居状态, 避免了发光法的缺陷. 本文采用飞秒时间分辨圆偏振光抽运-探测光

* 国家自然科学基金 (批准号: 60490295, 60678009) 和高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20050558030) 资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: tsststs@mail.sysu.edu.cn

谱技术,对 InGaN 薄膜中电子自旋极化注入和弛豫进行了研究,并对上述问题进行了讨论.

2. 实验原理

图 1 所示为 GaN 的能带结构.通常认为 InGaN 与 GaN 具有相同的能带结构^[10],In 的掺入仅改变带隙^[15].假设圆偏振光激发下重、轻空穴带电子跃迁强度比为 3:1,样品自旋注入原理如图 1 所示.在 GaN 体材料中,价带顶处轻、重空穴带有微小的分裂^[10,16].当用角动量量子数为 1 的左旋圆偏振光同时激发重、轻空穴带时,由于电子跃迁的选择定则,左旋圆偏振光只能激发 $|-\frac{3}{2}\rangle \rightarrow |-\frac{1}{2}\rangle$ 和 $|-\frac{1}{2}\rangle \rightarrow |-\frac{1}{2}\rangle$ 两个电子态的跃迁,但由于前者的激发强度是后者的 3 倍,所以, $|-\frac{1}{2}\rangle$ 自旋态中的电子密度 3 倍于 $|1/2\rangle$ 自旋态中的电子密度^[10,17].根据自旋偏振度 P 的定义: $P = \frac{n_- - n_+}{n_- + n_+}$,其中 n_+ 和 n_- 分别为自旋向上和自旋向下的电子密度,这样理论上便可获得 50% 的最大初始自旋偏振度.如果重轻空穴带的电子跃迁强度比为 1:0.94^[11],便仅可获得最大 3% 的初始自旋偏振度;若这一比例为 1:1^[14],则导带并不能激发出净自旋.无论在何种情况下,若能只激发重空穴带,则理论上可以获得 100% 的初始自旋偏振度.检验重、轻空穴价带的跃迁强度比正是本文的研究目的之一.

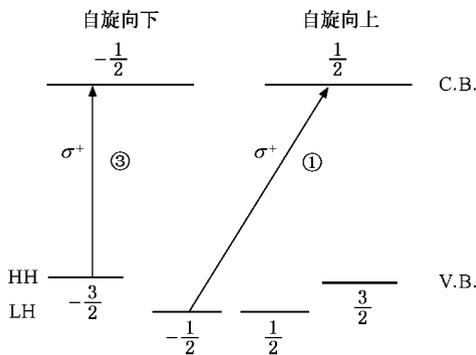


图 1 GaN 能带结构简图(其中 V.B. 和 C.B. 代表价带和导带, HH 和 LH 代表重空穴和轻空穴带.在左旋圆偏振光 σ^+ 的激发下,重、轻空穴带跃迁强度比 3:1)

3. 实验、结果和讨论

实验样品为 0.1 μm 厚的 $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}$ 薄膜,生长

在宝石为衬底 1 μm 厚的 GaN 膜上.图 2 为室温下样品的吸收谱和发光谱.对于吸收谱,362 nm 的吸收峰为 GaN 膜的吸收峰,而 InGaN 薄膜的吸收峰在 373 nm 左右.图中所示峰值为 378 nm 的发光谱为采用 325 nm 连续光直接激发 $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}$ 薄膜获得的.当从衬底面方向激发 GaN 薄膜时,在短波段并没有观察到明显的发光峰,只观察到明显的可见光发射,因此,图中所示 378 nm 发光峰为 InGaN 薄膜的贡献.图中虚线所包含区间对应于下面抽运-探测实验中飞秒激发光脉冲半高全宽的波长区域,这个区域位于 InGaN 吸收峰的低能方向,其原因将在后面进行论述.

钛宝石自锁模振荡器输出的 100 fs 脉冲光经 BBO 倍频晶体后,获得中心波长为 376 nm 的紫光,此紫光射入标准的非共线抽运-探测装置,获得功率分别为 25 mW 和 7 mW 的平行抽运、探测光束.通过一个非消色差的零级 1/4 波片,变成同旋向的左旋圆偏振(σ^+)抽运-探测光.然后由一个焦距为 80 mm 的正透镜聚聚在样品上同一点.探测光的透射变化由光电倍增管转换为电流,并送入锁相放大器检测.

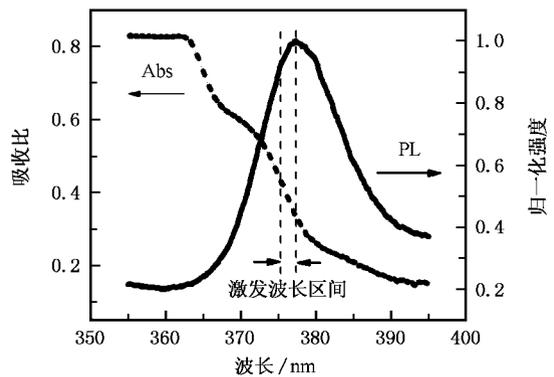


图 2 室温下 $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}$ 样品的吸收谱(虚线)和在 325 nm 连续光激发下的发光谱(实线)

实验结果如图 3 所示(σ^+, σ^+)所示曲线表示左旋圆偏振光抽运-探测结果($-, -$)所示曲线表示线偏振光抽运-探测结果.在 GaN 体材料中,重轻空穴带的能量差只有 5 meV^[15,18],实验中所用 100 fs 脉冲带宽就有 18 meV,重轻空穴带基本同时被激发.同时,从实验数据可以明显看出初始自旋偏振度大于 3%,这就排除了重轻空穴带电子跃迁强度比为 1:0.94 或 1:1 的可能性,从而支持 3:1 的跃迁强度比.对于同向圆偏振光抽运-探测,由于受四分之

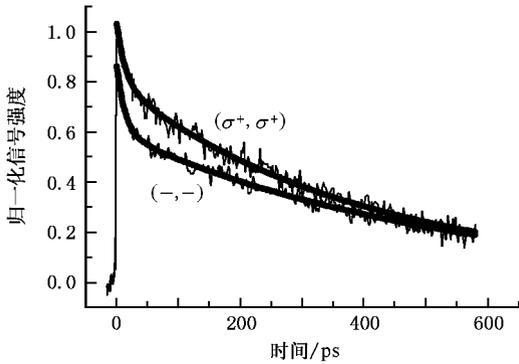


图3 透射型抽运-探测时间分辨曲线(σ^+ , σ^+)表示左旋圆偏振光抽运-探测, $(-, -)$ 表示线偏振光抽运-探测. 细实线为实验结果, 粗实线为拟合结果)

一波片带宽限制以及方位角的调节精度等因素的影响, 实验中不能保证抽运光为严格的圆偏振光, 采用赖天树等人^[19-21]发展的椭圆偏振光抽运-探测光谱一般模型来分析实验结果. 观察图3中 $(-, -)$ 衰减曲线, 明显的包含快、慢两个衰减过程, 因此, 应该使用双指数和描述电子复合衰减过程. 因而, 文献[21]中方程(5)的载流子复合项要用双指数和代替, 此方程变为

$$\frac{\Delta I(t)}{I_0} = \left(1 + \frac{1}{2} P e^{-t/T_s}\right) (A e^{-t/T_{f1}} + B e^{-t/T_{f2}}), \quad (1)$$

其中 T_s , T_{f1} , T_{f2} 分别代表自旋偏振弛豫寿命, 载流子复合慢过程寿命和载流子快弛豫寿命. P 表示初始注入电子自旋偏振度. 采用(1)式最小二乘拟合 $(\sigma^+$, $\sigma^+)$ 衰减曲线, 拟合结果如图中粗实线所示, 得到拟合参数 $T_s = 490 \pm 70$ ps, $T_{f1} = 450 \pm 7$ ps, $T_{f2} = 12 \pm 3$ ps, $P \approx 0.2$. 同时通过双指数和直接拟合 $(-, -)$ 衰减曲线, 得到 $T_{f1} = 495 \pm 10$ ps, $T_{f2} = 13 \pm 2$ ps. 拟合的结果如图3对应的粗实线所示, 对比两次拟合获得的 T_{f1} , T_{f2} , 基本一致, 表明结果是可靠的. 长寿命 T_{f1} 对应于电子空穴复合过程, 而短寿命 T_{f2} 对应于电子冷却过程.

实验获得 $P \approx 0.2$, 与理论预期的 $P = 0.5$ 相比, 实验结果偏小. 这一方面是由于抽运-探测光脉冲并不是严格的圆偏振光, 另一方面, 更主要原因可能是由于 S—O 分裂价带被部分激发了, 因为重空穴带与 S—O 分裂带的能量差为 18—20 meV^[18], 脉冲的半高全宽也接近 20 meV, 所以, S—O 分裂带处于脉

冲光谱高能端尾部, 而 S—O 分裂带的激发强度为轻空穴带的 2 倍, 因此, S—O 分裂带会有明显的激发, 增加了 $|1/2|$ 自旋导带中的电子密度, 从而降低了初始注入的电子自旋极化度. 我们采用位于 InGaN 吸收峰的低能方向的光脉冲激发样品, 目的就是为在保证激发效率的同时, 使激发光脉冲中心波长能量尽量接近重空穴带隙能量, 以减少对 S—O 分裂带的激发, 获得尽可能大的初始自旋偏振度.

半导体中电子自旋弛豫主要有三种机理, 即 DP 机理^[22], EY 机理^[23, 24]和 BAP 机理^[25]. DP 机理指出由于晶体缺乏中心反演对称性, 自旋-轨道相互作用使得具有相同波矢但不同自旋方向的电子态发生分裂, 这相当于引入一个大小和方向分别依赖于波矢的大小和方向的有效磁场, 驱使自旋围绕它进动, 而载流子与载流子、声子、杂质等的散射作用导致波矢的随机化, 从而导致有效磁场的随机化, 这样便产生自旋极化弛豫^[26]. 由于 GaN 材料中 S—O 分裂能非常小(仅 20 meV), 因而 DP 机理在这里不应该起主导作用^[27]. EY 机理指出, 导带电子波函数与具有相反自旋态的价带波函数混合而导致自旋翻转. 在宽带隙半导体材料中, 这种相互作用不明显, 因而 EY 机理在这里也不是主要的自旋弛豫机理^[28]. 因此, 剩余的 BAP 机理应该是自旋弛豫的主要机理. BAP 机理源于电子-空穴交换相互作用, 使电子-空穴发生同步翻转而导致自旋弛豫. 图2中显示样品有强的发光, 表明有强的电子-空穴作用, 这也为 BAP 自旋机理提供了证据. 要进一步确定样品的自旋弛豫机理, 需要开展自旋弛豫过程的温度依赖或载流子浓度依赖或电子过超能量依赖等进一步实验研究.

4. 结 论

采用飞秒时间分辨圆偏振光抽运-探测光谱技术对 $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}$ 薄膜的电子自旋极化注入和偏振弛豫进行了研究. 实验获得初始自旋偏振度约为 0.2, 偏振弛豫时间为 490 ± 70 ps. 针对目前文献报道的几种重、轻空穴带跃迁强度比, 我们的结果支持 3:1 的跃迁比例, 而不支持 1:1 或 1:0.94. 同时, 讨论了几种主要的自旋弛豫机理, 认为 BAP 机理是本实验样品中自旋弛豫主导机理. 进一步的自旋弛豫机理验证, 有待自旋弛豫的温度、浓度或过超能量依赖实验研究.

- [1] Wolf S A , Awschalom D D , Buhrman R A *et al* 2001 *Science* **294** 1488
- [2] Baibich M N , Broto J M , Fert A *et al* 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2472
- [3] Gary A P 1998 *Science* **282** 1660
- [4] Pearton S J , Norton D P , Frazier R *et al* 2005 *IEE Proc. -Circuits, Devices, Syst.* **152** 312
- [5] Beschoten B , Johnston-Halperin E , Young D K *et al* 2001 *Phys. Rev. B* **63** 121202
- [6] Dietl T , Ohno H , Matsukura F *et al* 2000 *Science* **287** 1019
- [7] Buyanova A , Bergman J P , Chen W M *et al* 2004 *J. Vac. Sci. Technol. B* **22** 2668
- [8] Matsui Y , Vakhshoori D , Peidong W *et al* 2003 *IEEE Journal of Quantum Electronics* **39** 1037
- [9] Julier M , Vinattieri A , Colocci M *et al* 1999 *Phys. Stat. Sol. (b)* **216** 341
- [10] Nagahara S , Arita M , Arakawa Y *et al* 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 242103
- [11] Chen W M , Buyanova I A , Nishibayashi K *et al* 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 192107
- [12] Buyanova I A , Izadifard M , Chen W M *et al* 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 2599
- [13] Pryor C E , Flatte M E 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 257901
- [14] Tackeuchi A , Kuroda T , Shikanai A *et al* 2000 *Physica. E* **7** 1011
- [15] Wright A F , Nelson J S 1995 *Appl. Phys. Lett.* **66** 3051
- [16] Chichibu S F , Torii K , Deguchi T *et al* 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 1576
- [17] Choi C K , Lam J B , Gainer G H *et al* 2001 *Phys. Rev. B* **65** 155206
- [18] Ren G B , Liu Y M , Blood P *et al* 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 1117
- [19] Tianshu L , Luming L , Shou Q *et al* 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 4040
- [20] Tianshu L , Xiaodong L , Haihong X *et al* 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 262110
- [21] Lai T S , Liu L N , Lei L *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 967 (in Chinese) [赖天树、刘鲁宁、雷亮等 2005 物理学报 **54** 967]
- [22] D'yakonov M I and Perel V I 1971 *Sov. Phys. JETP* **33** 1053
- [23] Elliott R J 1954 *Phys. Rev.* **96** 266
- [24] Yafet Y 1963 *Solid State Phys* **14** 1
- [25] Bir G L , Aronov A G , Pikus G E 1976 *Sov. Phys. JETP* **42** 705
- [26] Wang J W , Li S S and Xia J B 2006 *Progress in Physics* **26** 228 (in Chinese) [王建伟、李树深、夏建白 2006 物理学进展 **26** 228]
- [27] Krishnamurthy S , Schilfgaarde M , Newman N 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 1761
- [28] Tackeuchi A , Otake H , Ogawa Y *et al* 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 162114

Study of injection and relaxation of electron spins in InGaN film by time-resolved absorption spectroscopy^{*}

Chen Xiao-Xue Teng Li-Hua Liu Xiao-Dong Huang Qi-Wen Wen Jin-Hui Lin Wei-Zhu Lai Tian-Shu[†]

(State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies , Department of Physics , Sun Yat-Sen University , Guangzhou 510275 , China)

(Received 30 July 2007 ; revised manuscript received 14 November 2007)

Abstract

The injection and relaxation of electron spins in In_{0.1}Ga_{0.9}N film were studied by femtosecond time-resolved circularly polarized pump-probe spectroscopy. An initial degree of spin polarization of 0.2 was obtained, which agrees with 3:1 ratio of heavy- to light-hole valence bands in transition strength, but not with the 1:1 or 1:0.94 ratios. A spin relaxation lifetime of 490 ± 70 ps was obtained at room temperature. The spin relaxation mechanism is discussed qualitatively, and is thought to be dominated by BAP mechanism here.

Keywords : electron spin , InGaN , spin polarization , spin relaxation

PACC : 7847 , 6740F , 7730 , 7280E

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60490295 , 60678009) and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20050558030).

[†] Corresponding author. E-mail : tsts@mail.sysu.edu.cn