

室温下 (Ga,Mn)As 中载流子的自旋弛豫特性^{*}

刘晓东¹⁾ 王玮竹²⁾ 高瑞鑫¹⁾ 赵建华²⁾ 文锦辉¹⁾ 林位株¹⁾ 赖天树^{1)†}

1) 中山大学物理系, 光电材料与技术国家重点实验室, 广州 510275)

2) 中国科学院半导体研究所半导体超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

(2007 年 9 月 3 日收到, 2007 年 10 月 4 日收到修改稿)

运用飞秒时间分辨抽运-探测克尔光谱技术, 研究了室温下退火及未退火 (Ga,Mn)As 的载流子自旋弛豫的激发能量密度依赖性, 发现电子自旋弛豫时间随激发能量密度增加而增大, 而在同一激发能量密度下, 退火样品比未退火样品具有更短的载流子复合时间、电子自旋弛豫时间和更大的克尔转角, 显示 DP 机理是室温下 (Ga,Mn)As 的电子自旋弛豫的主导机理. 退火 (Ga,Mn)As 的超快克尔增强效应显示其在超高速全光自旋开关方面的潜在应用价值, 也为 (Ga,Mn)As 铁磁性起源的 p-d 交换机理提供了证据.

关键词: (Ga,Mn)As 稀磁半导体, 时间分辨克尔光谱, 电子自旋弛豫, DP 机理

PACC: 7847, 6740F, 7820L, 7360F

1. 引 言

自旋注入是实现半导体自旋电子器件的首要问题. Schmidt 等人^[1]指出只有当自旋源极的电导率小于或等于半导体的电导率时, 才有可能实现半导体的高效率自旋注入. 而 (Ga,Mn)As 的电导率与 GaAs 半导体的电导率接近, 并且 (Ga,Mn)As 在居里温度以下呈现铁磁性, 因而 (Ga,Mn)As 在未来基于 GaAs 的自旋电子器件制作中是一种潜在的高效率自旋极化注入源, 具有广阔的应用前景. Ohno 等人^[2]已实验演示了 (Ga,Mn)As/GaAs 结构自旋注入发光二极管的可行性. 有关 (Ga,Mn)As 铁磁性的机理问题, 目前仍存在较大的争议. 但空穴浓度是影响其铁磁性的重要因素, 在这点上 RKKY 机理和 Zener 模型在平均场近似下^[3]是没有分歧的. 同时 (Ga,Mn)As 的铁磁性只有在居里温度以下才显示出来, 目前报道的最高居里温度 T_c 也才 170 K^[4], 限制了它的实际应用. 在低温自旋动力学研究方面, Mitsumori 等人^[5]发现 (Ga,Mn)As 在居里温度上下的低温环境里有不同的自旋弛豫速率, 认为 (Ga,Mn)As 中的 Mn 磁矩自旋通过 p-d 交换作用机理可以被少量的光生极化空穴同步带动. 由于样品的差别,

Kimel 等人^[6]却发现 (Ga,Mn)As 在居里温度上下的低温环境里自旋信号区别不大, 认为自旋弛豫信号起源于样品的导带极化电子, 而 Mn 离子的能级被混合定位于价带, 对导带电子自旋的影响可以忽略. 室温下 (Ga,Mn)As 的自旋动力学特性研究尚未见报道, 室温下 Mn 磁矩是否对材料的磁光性能有影响以及 (Ga,Mn)As 材料是否具有实用价值和应用潜力仍不清楚. 本文利用飞秒时间分辨的磁光克尔光谱技术, 研究室温下退火与未退火 (Ga,Mn)As 样品的载流子自旋弛豫特性, 显示出退火 (Ga,Mn)As 在超高速全光自旋开关方面^[7]的潜在应用价值. 同时, 我们的结果也支持 (Ga,Mn)As 铁磁性起源的空穴传递机理.

2. 实验研究

实验样品 (Ga,Mn)As 薄膜利用低温分子束外延技术生长在半绝缘 GaAs (001) 衬底上, 厚度约 100 nm. 通过双晶 X 射线衍射测得 Mn 含量为 10%. 根据剩余磁矩 M_r (T) 的温度依赖曲线测得未退火样品的居里温度 T_c 为 80 K, 而在空气环境中 280 °C 低温退火一小时后, T_c 增加到 140 K.

钛宝石自锁模激光振荡器产生的脉宽约 50 fs,

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 60490295, 60678009, 10334030)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: stslts@mail.sysu.edu.cn

中心波长 800 nm, 重复率 93 MHz 飞秒激光脉冲列通过一个标准的非共线抽运-探测实验装置, 获得抽运探测强度比约为 5 的平行光束输出, 并由一个焦距 50 mm 的透镜聚焦到 (Ga, Mn)As 薄膜样品上的同一点, 光斑直径约 25 μm . 插入一个 $\lambda/4$ 波片到抽运光束中, 控制抽运光为左、右旋圆或线偏振光. 圆偏振抽运光激发 (Ga, Mn)As 后, 注入的自旋极化载流子将感应反射线偏振探测光的偏振面旋转^[8], 克尔转角由平衡光桥^[9, 10]探测. 图 1 所示为激发能量密度为 168.8 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ 下退火和未退火 (Ga, Mn)As 样品克尔转角随延迟时间的变化曲线, 可以看出两个样品在左、右旋圆偏振光抽运下, 信号对称性非常好, 反映了自旋极化在 (Ga, Mn)As 样品中的各向同性. 线偏振光抽运如预期没有克尔旋转, 证实了克尔信号起源于样品中光生载流子自旋极化. 插图分别为相同条件下反射率相对变化量随延迟时间的衰减曲线, 反映光生载流子的复合. 对比图 1 (a) 和 (b), 退火样品比未退火样品有更大的克尔转角, 更快的自旋弛豫和载流子复合, 原因在下节中讨论.

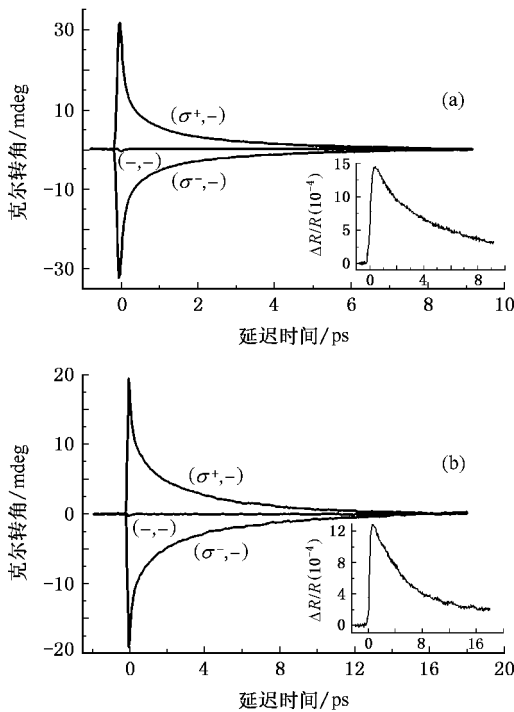


图 1 克尔转角随延迟时间的变化曲线. 插图分别为反射率相对变化量随延迟时间的衰减信号 (a) 为退火样品信号 (b) 为未退火样品信号, $(\sigma^+, -)$, $(\sigma^-, -)$ 及 $(-, -)$ 分别对应左、右旋圆和线偏振光抽运的情况

为了研究 (Ga, Mn)As 在室温下的自旋弛豫机理, 我们进行了自旋弛豫动力学的激发功率依赖实

验. 抽运功率在 10—90 mW 之间, 每隔 5 mW 测量一组克尔转角衰减曲线和反射率相对变化量衰减曲线. 观察两个样品自旋弛豫随激发能量密度的变化情况. 图 2 所示为 5 个典型激发能量密度下退火和未退火 (Ga, Mn)As 样品的克尔转角时间演化曲线, 反射率相对变化量衰减曲线未绘出. 可以看出两个样品的克尔转角都随激发能量密度的增加而变大, 自旋弛豫变慢, 但在相同激发能量密度下, 退火样品比未退火样品仍有更大的克尔转角和更短的自旋寿命, 原因如下节所述.

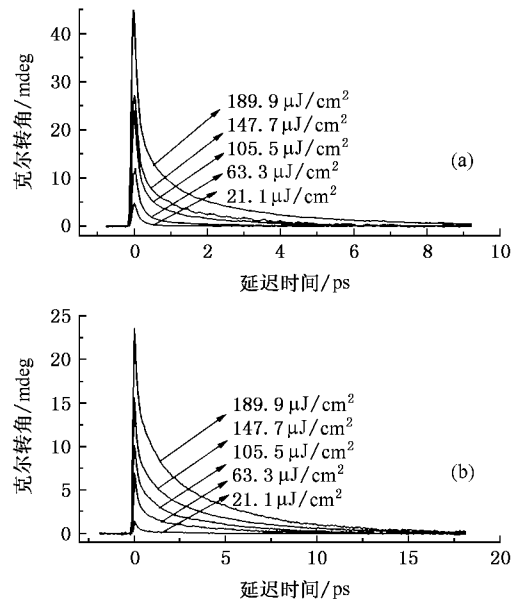


图 2 自旋弛豫随激发能量密度的变化曲线 (a) 为退火样品信号 (b) 为未退火样品信号

3. 结果分析与讨论

在 Voigt 结构的外加磁场实验中, 电子自旋绕外加磁场进动. 在载流子复合寿命比电子自旋退相干时间大得多的情况下, 载流子复合对法拉第或克尔转角的衰减影响可以忽略. 这种情况下, 转角随时间变化通常描述为^[9]

$$\alpha(t) = \theta_0 e^{-t/T_2^*} \cos\left(\frac{g_e \mu_B B}{\hbar} t\right), \quad (1)$$

其中 θ_0 为最大转角, g_e 为电子的 g 因子, μ_B 为玻尔磁子, B 为外加磁场, T_2^* 称为电子的自旋退相干时间. 本文实验中, 未加外磁场, 因而没有拉莫尔进动这一余弦调制项. 从图 1 可看出, 样品的载流子复合和克尔转角衰减的速率相当, 所以载流子复合对

克尔转角衰减的影响不能忽略(1)式应修正为

$$\alpha(t) = \theta_0 e^{-t/T_1} e^{-t/T_r}, \quad (2)$$

式中 T_1 为电子的纵向自旋弛豫时间, T_r 为载流子复合时间.

观察图1和图2中克尔转角衰减曲线,发现信号不是单指数衰减,在延迟零点附近有一个快的衰减过程.因此(2)式中描述克尔转角的部分应修正为双指数衰减,即

$$\alpha(t) = (\theta_f e^{-t/T_f} + \theta_0 e^{-t/T_r}) e^{-t/T_r}, \quad (3)$$

式中 T_f 为快自旋弛豫过程的时间常数, θ_f 为这一过程的最大转角.

首先,应用单指数衰减函数拟合各个激发能量密度下获得的反射率衰减曲线,获得载流子复合时间常数 T_r 随激发能量密度的变化,如图3(a)中离散点所示.然后用(3)式拟合各个激发能量密度下的克尔转角衰减曲线,其中复合时间常数 T_r 使用图3

(a)中已获得的对应激发能量密度下的复合时间常数,获得的电子纵向自旋弛豫时间 T_1 随激发能量密度变化关系如图3(b)中离散点所示,而快、慢自旋弛豫过程贡献的最大克尔转角 θ_f, θ_0 随激发能量密度变化如图4所示.同时,获得快自旋弛豫时间常数 T_f 为200 fs左右,几乎不随激发能量密度变化,故没有给出图示.从时间尺度考虑,此快自旋弛豫过程应该反映的是自旋极化载流子的热化过程^[11]或极化空穴的自旋弛豫过程^[12]或者两者共存.

如图3(a)所示,两个样品的载流子复合时间均随激发能量密度增加而增大,与Xu等人^[13]观察到的GaAs体材料中载流子复合时间常数随激发载流子浓度增加而增大的结果一致.至于在相同激发能量密度下,退火样品比未退火样品有更小的复合时间常数,主要由退火工序引起.(Ga,Mn)As样品在LT-MBE生长过程中需要高As₄/Ga束流比,导致大量As反位点缺陷As_{Ga}^[14]的引入,同时,还有较多的Mn间隙原子缺陷Mn_i^[15,16],它们都为双施主杂质,提供的电子部分补偿了Mn替位掺杂Mn_{Ga}提供的空穴,价带中总的空穴浓度^[17]为 $p = [Mn_{Ga}] - \alpha[As_{Ga}] + [Mn_i]$.低温退火后,Mn_i缺陷向表面转移^[18]降低了Mn_i缺陷对Mn替位掺杂Mn_{Ga}贡献的空穴的补偿,因而使退火样品空穴浓度增大,电子-空穴复合概率增加,导带电子复合加速,从而导致退火样品比未退火样品具有更短的复合时间.

如图3(b)所示,两个样品的电子自旋弛豫时间

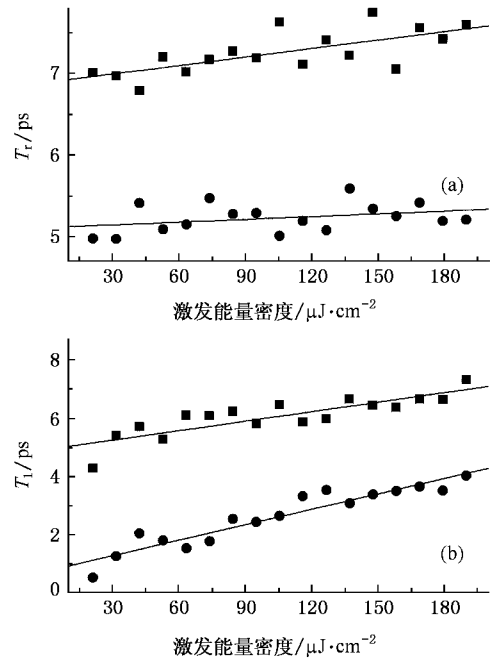


图3 复合时间和自旋弛豫时间常数随激发能量密度的变化关系 (a)和(b)分别为载流子复合时间和电子自旋弛豫时间的激发能量密度依赖,实心圆点和实心方块点分别代表退火及未退火样品的时间常数,实线为它们的最小二乘线性拟合

随激发能量密度增加而变大,与GaAlAs/GaAs多量子阱中电子自旋弛豫时间常数随激发载流子浓度增加而增大的规律类似^[19],说明室温下(Ga,Mn)As材料的电子自旋弛豫的主要机理为DP机理^[8].此外,在相同激发能量密度下,退火样品比未退火样品有更小的自旋弛豫时间常数,这也进一步支持这一观点.因为DP退自旋机理理论预测电子的自旋弛豫速率反比于动量弛豫速率,低温退火后样品缺陷和杂质浓度降低,散射事件减少,自旋轨道耦合作用增强,动量弛豫速率变慢,从而导致退火样品比未退火样品具有更短的自旋弛豫时间.

图4中实心圆点和方块分别表示退火和未退火样品中慢弛豫过程的最大克尔转角 θ_0 随激发能量密度的变化,两者均随激发能量密度增加而增大,其原因在于慢弛豫过程对应于电子自旋的弛豫,而激发能量密度的增加引起光注入自旋电子浓度的增加.此外,两者几乎重合,说明在相同激发能量密度下,电子自旋对克尔转角的贡献在退火与未退火样品中几乎一致,显示出两个样品中光激发自旋电子、空穴浓度相当.空心圆点和方块分别表示退火和未退火样品中快弛豫过程的最大克尔转角 θ_f 随激发能量密度的变化,两者也随激发能量密度增加而增

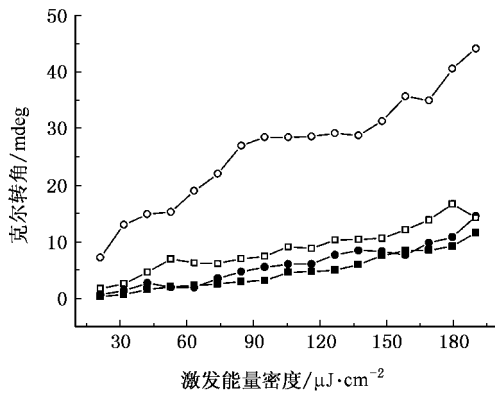


图4 最大克尔转角随激发能量密度的变化关系。实心圆点和方块分别代表退火和未退火样品中慢弛豫过程初始克尔转角 θ_0 的激发能量密度依赖,而空心点分别对应于快弛豫过程初始克尔转角 θ_1 的激发能量密度依赖

大,但在相同激发能量密度下,退火样品比未退火样品有更大的克尔转角,表明快自旋弛豫过程不是光注入自旋极化载流子的热化过程单独贡献的,空穴自旋弛豫也做出了显著贡献,除了光激发注入的自旋极化空穴外,还有额外的自旋极化空穴产生,并且退火样品比未退火样品中产生了更高的额外自旋极化空穴浓度.我们认为这些额外自旋极化空穴的产生正是源于(Ga,Mn)As铁磁性起源的p-d交换机理^[20].p-d交换机理认为,光注入的自旋极化空穴能够通过p-d交换相互作用使掺杂Mn离子贡献的空穴也被自旋极化,在Mn磁矩附近形成一个磁平均场,使处于反铁磁耦合的Mn磁矩^[21]产生自发磁化,从而产生铁磁性.然而,在室温下,Mn离子的热振动能量远大于铁磁态的能垒高度,所以,Mn磁矩的自

发磁化不能维持.但其d轨道贡献的空穴的自旋极化却增强了克尔效应,由于空穴自旋的快速弛豫^[12]增强的克尔效应只反映在快弛豫过程中.至于退火样品比未退火样品有更强的克尔效应增强效果,其原因与上面复合时间差别的讨论一样,是因为退火样品比未退火样品有更高的空穴浓度,进而退火样品中被自旋极化的额外空穴浓度高于未退火样品的.这一实验结果也进一步支持(Ga,Mn)As铁磁性起源的p-d交换机理理论.

4. 结 论

在室温下,研究了退火与未退火(Ga,Mn)As样品的载流子自旋弛豫的激发能量密度依赖性,发现两个样品的电子自旋弛豫时间随激发能量密度的增加而增大,表明DP机理是室温下(Ga,Mn)As电子自旋弛豫过程的主导机理.在同一激发能量密度下,退火样品的电子自旋弛豫时间比未退火样品的短,也进一步支持DP机理是(Ga,Mn)As样品中的主要自旋弛豫机理.在同一激发能量密度下,退火样品比未退火样品具有更短的载流子复合时间,是因为退火引起的Mn_i缺陷向表面转移增加了空穴浓度,加速了导带中热电子复合,在同一激发能量密度下,退火样品比未退火样品具有更大的克尔转角,为(Ga,Mn)As的铁磁性起源的p-d交换模型提供了进一步证据.(Ga,Mn)As材料的这种p-d交换空穴增强克尔效应,使其在超高速全光自旋开关应用方面具有潜在的应用价值.

[1] Schmidt G, Ferrand D, Molenkamp L W, Filip A T, Wees B J 2000 *Phys. Rev. B* **62** R4790
 [2] Ohno Y, Young D K, Beschoten B, Matsukura F, Ohno H, Awschalom D D 1999 *Nature* **402** 790
 [3] Dietl T, Ohno H, Matsukura F 2001 *Phys. Rev. B* **63** 195205
 [4] Ohya S, Ohno K, Tanaka M 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 112503
 [5] Mitsumori Y, Oiwa A, Slupinski T, Maruki H, Kashimura Y K, Minami F, Munekata H 2004 *Phys. Rev. B* **69** 033203
 [6] Kimel A V, Astakhov G V, Schott G M, Kirilyuk A, Yakovlev D R, Karczewski G, Ossau W, Schmidt G, Molenkamp L W, Rasing Th 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 237203
 [7] Yildirim M, Prineas J P, Gansen E J, Smirl A L 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 063506
 [8] Zutic I, Fabian J, Sarma S D 2004 *Rev. Mod. Phys.* **76** 323

[9] Baumberg J J, Awschalom D D, Samarth N 1994 *J. Appl. Phys.* **75** 6199
 [10] Wilks R, Hughes N D, Hicken R J 2003 *J. Phys: Condens. Matter* **15** 5129
 [11] Hunsche S, Heesel H, Ewertz A, Kurz H, Collet J H 1993 *Phys. Rev. B* **48** 17818
 [12] Hilton D J, Tang C L 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 146601
 [13] Xu Z Y, Tang C L 1984 *Appl. Phys. Lett.* **44** 692
 [14] Sanvito S, Hill N A 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 3493
 [15] Yu K M, Walukiewicz W, Wojtowicz T, Kuryliszyn I, Liu X, Sasaki Y, Furdyna J K 2002 *Phys. Rev. B* **65** 201303
 [16] Guo X G, Chen X S, Sun Y L, Zhou X H, Sun L Z, Lu W 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3545 (in Chinese)[郭旭光、陈效双、孙沿林、周孝好、孙立忠、陆卫 2004 物理学报 **53** 3545]

- [17] Sadowski J , Domagala J Z , Osinniy V , Kanski J , Adell M , Ilver L , Hernandez C , Terki F , Charar S , Maude D 2006 *arXiv : cond-mat* 0601623
- [18] Deng J J , Zhao J H , Tan P H , Bi J F , Gan H D , Niu Z C , Wu X G 2007 *J. M. M. M.* **308** 313
- [19] Wu Y , Jiao Z X , Lei L , Wen J H , Lai T S , Lin W Z 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2961 (in Chinese) [吴 羽、焦中兴、雷 亮、文 锦辉、赖天树、林位株 2006 物理学报 **55** 2961]
- [20] Matsukura F , Ohno H , Shen A , Sugawara Y 1998 *Phys. Rev. B* **57** R2037
- [21] Esch A V , Bockstal L V , Boeck J D , Verbanck G , Steenberg A S , Wellmann P J , Grietens B , Bogaerts R , Herlach F , Borghs G 1997 *Phys. Rev. B* **56** 13103

Carrier spin relaxation in (Ga ,Mn)As at room temperature ^{*}

Liu Xiao-Dong¹⁾ Wang Wei-Zhu²⁾ Gao Rui-Xin¹⁾ Zhao Jian-Hua²⁾ Wen Jin-Hui¹⁾ Lin Wei-Zhu¹⁾ Lai Tian-Shu^{1)†}

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

2) *State Key Laboratory for Superlattices and Microstructures , Institute of Semiconductors , Chinese Academic of Science , Beijing 100083 , China*

(Received 3 September 2007 ; revised manuscript received 4 October 2007)

Abstract

In this paper , the excitation energy density dependence of carrier spin relaxation is studied at room temperature for the as-grown and annealed (Ga ,Mn)As samples using femtosecond time-resolved pump-probe Kerr spectroscopy . It is found that spin relaxation lifetime of electrons lengthens with increasing excitation energy density for both samples , and the annealed (Ga ,Mn)As has shorter carrier recombination and electron spin relaxation lifetimes as well as larger Kerr rotation angle than the as-grown (Ga ,Mn)As under the same excitation condition , which shows that DP mechanism is dominant in the spin relaxation process for (Ga ,Mn)As at room temperature . The enhanced ultrafast Kerr effect in the annealed (Ga ,Mn)As shows the potential application of the annealed (Ga ,Mn)As in ultrafast all-optical spin switches , and also provides a further evidence for the p-d exchange mechanism of the ferromagnetic origin of (Ga ,Mn)As .

Keywords : (Ga ,Mn)As diluted magnetic semiconductor , time-resolved Kerr spectroscopy , electron spin relaxation , DP mechanism

PACC : 7847 , 6740F , 7820L , 7360F

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60490295 , 60678009 , 10334030) , and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20050558030) .

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