

载流子复合对时间分辨法拉第旋转光谱的影响*

滕利华[†] 王霞

(青岛科技大学数理学院, 青岛 266061)

(2010年6月21日收到; 2010年8月12日收到修改稿)

利用二能级体系速率方程, 推导了半导体中探测光探测到的法拉第旋转光谱的理论模型, 发现电子-空穴对的复合对法拉第旋转信号随时间的衰减有重要影响, 并利用该模型对 GaAs 量子阱中实验测得的法拉第旋转光谱进行拟合, 得到 GaAs 量子阱材料中的电子自旋弛豫时间为 73.5 ps, 而直接利用单指数进行拟合得到的电子自旋弛豫时间仅为 51.3 ps. 因此, 直接利用单指数对法拉第旋转光谱进行拟合得到电子自旋弛豫时间的传统做法是不准确的.

关键词: 自旋弛豫时间, 时间分辨法拉第旋转光谱, GaAs 量子阱

PACS: 72.80.Ey, 72.25.Rb

1. 引言

半导体自旋电子器件以其低功耗、低热耗散和速度快而受到广泛关注, 被认为在下一代半导体纳米电子器件集成制造中具有广阔的应用前景^[1-3]. 然而, 这些应用都依赖于高的自旋极化和不同自旋弛豫寿命的获得. 目前的基础研究正是集中于 III-V 族半导体及其量子阱结构中电子自旋极化和弛豫的理论和实验研究, 探索影响自旋极化和弛豫寿命的因素^[4-13]. 目前发展的电子自旋弛豫的检测方法主要有时间分辨发光圆偏振度法^[13,14], 时间分辨圆偏振光饱和吸收光谱法^[15-19]以及时间分辨法拉第/克尔旋转光谱法^[20,21]. 发光圆偏振度法基于自旋取向向上和向下电子与空穴辐射复合时分别发出左右旋圆偏振光, 然后再基于电子自旋偏振度与发光圆偏振度相同的基本假设, 即可获得电子自旋偏振度的时间弛豫^[13,14]. 然而, 其缺点是通常要求实验测量在低温下进行, 以增大辐射复合概率, 从而提高发光效率. 另外, Proyr 和 Flatté 等人^[22]的研究结果表明电子自旋偏振度等于发光圆偏振度的假设并不总是成立, 因此, 发光圆偏振度法的适用范围具有很大的局限性. 圆偏光饱和吸收光谱法利用圆偏振的抽运光进行激发, 电子在半导体材料的导带

中实现自旋取向向上或取向向下占优的布居, 然后, 用与抽运光同旋向或反旋向的圆偏振探测光进行饱和吸收探测, 由于吸收过程的选择性, 两种相反旋向圆偏振探测光透射率及二者的差异均包含了自旋弛豫的信息^[15-19]. 该方法的优点是不仅能获得电子自旋偏振弛豫时间, 还能获得电子初始自旋偏振度和电子寿命. 其局限性是样品在超快激光脉冲激励下需要光生电子-空穴对的实际存在, 并要有明显的饱和吸收现象, 同时实验光谱中包含信息较多, 自旋弛豫寿命的提取较为复杂. 时间分辨法拉第/克尔旋转光谱法利用圆偏振的抽运光激发自旋偏振的电子, 然后利用线偏振的探测光进行探测, 测量线偏振透射光/反射光偏振面的偏转角度, 可以得知自旋弛豫的信息^[20,21]. 其中法拉第旋转光谱法利用的是法拉第效应^[20], 探测光透射信号的偏振面会发生偏转, 该偏转角度就可以反映样品中磁矩的大小. 克尔旋转光谱法利用的是克尔磁光效应^[21], 入射的线偏振光在已磁化的物质表面反射时, 振动面发生旋转. 与圆偏振光饱和吸收光谱法不同, 时间分辨法拉第/克尔旋转光谱法中偏振面转角的大小取决于样品磁化强度, 并不需要光生空穴的实际存在, 因此并不需要出现明显的饱和吸收信号, 因而灵敏度很高, 可以测量很弱的自旋偏振信号, 因此, 时间分辨法拉第/克尔旋转光谱法已成

* 国家自然科学基金(批准号:10974106), 山东省杰青基金(批准号:JQ201018), 山东省自然科学基金重点项目(批准号:ZR2009AZ002), 青岛科技大学引进人才科研启动基金(批准号:4000022428)资助课题.

[†] E-mail: tenglihua76@gmail.com

为目前用于测量电子自旋弛豫时间的最常用方法. 另外, 通常认为电子寿命远大于自旋弛豫寿命, 电子-空穴对的复合对法拉第/克尔旋转信号随时间的衰减没有贡献, 可以从法拉第/克尔旋转光谱中直接利用单指数拟合得到电子自旋弛豫寿命^[20,21]. 然而, 本文以法拉第旋转光谱法为例, 推导了探测光探测到的法拉第旋转光谱的理论模型, 并利用该模型对 GaAs 量子阱中实验测得的法拉第旋转光谱进行拟合, 得到准确的电子自旋弛豫时间, 发现电子-空穴对的复合对法拉第旋转信号随时间的衰减有重要影响.

2. 实验装置及结果

法拉第旋转光谱法的实验装置如图 1 所示, 钛宝石自锁模激光器输出的脉宽为 80 fs, 重复率为 82 MHz 的线偏振激光脉冲列, 经过分束镜 BS 分为强度比为 3:1 的抽运光和探测光, 抽运光经 M₁ 和 M₂ 组成的固定臂后通过斩波器 C, 然后通过 1/4 波片后变为圆偏振光. 探测光经 M₃, M₄ 和 M₅ 组成的可变延迟臂后与抽运光平行的通过凸透镜 L 共同聚焦到样品 S 上同一点, 透过样品的线偏振探测光在经过透镜 L 聚焦后, 再通过 1/2 波片和格兰棱镜 G-L 将探测光分解成水平和垂直两个正交分量, 并送到两差分对管组成的探测系统进行差分运算. 差分运算的结果收集到锁相放大器同步检测.

线偏振的探测光通过样品后线偏振面发生旋转, 透射光偏振面与 G-L 光轴的夹角 θ 为

$$\theta = \theta_0 + \Delta\theta_F, \quad (1)$$

其中 θ_0 是没有抽运光激发时样品及测量系统共同

引起的背景偏转角, 只有 $\Delta\theta_F$ 才是抽运光激发后引起的法拉第旋转角的微小变化, 通常在测量前通过调节 $\lambda/2$ 波片的光轴将背景偏转角调为 45° , 此时, 线偏振光通过 G-L 棱镜将透射光分解成强度相等的两个水平和垂直正交分量, 两差分对管组成的探测系统进行差分运算后测量结果为零. 有抽运光激发时, 法拉第旋转角的微小变化将引起该平衡点的偏离, 差分运算后测量信号就是法拉第旋转角随时间的演化.

实验中所用的 GaAs 量子阱样品由分子束外延方法 (MBE) 沿 (001) 方向生长, 由 Ga_{0.7}Al_{0.3}As (6 nm) 和 GaAs (10 nm) 交叠 11 层组成. 实验中抽运光激发的载流子浓度为 $\sim 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, 激光波长调节为 825 nm, 轻、重空穴价带电子同时被激发到导带. 图 2 中 $\Delta\theta_F$ 标识的实线为测量的归一化法拉第转角信号随时间的演化. 由图可见, 法拉第转角信号随时间的增大而减小, 主要反映电子自旋极化度随时间的减小. 另外, 利用圆偏振光饱和吸收光谱法在相同的实验条件下对该样品的电子自旋弛豫时间进行了测量, 实验装置与参考文献 [16,23] 相同, 测量结果如图 2 中插图所示, 图中 (σ^+, σ^+) 和 (σ^+, σ^-) 标识的实线分别表示同旋向和反旋向圆偏振光抽运-探测得到的饱和透射强度变化曲线, $(-, -)$ 标识的实线为线偏振的抽运和探测光抽运-探测得到的饱和透射强度变化曲线, 随时间的增大电子-空穴对发生复合, 载流子浓度降低, 对应于饱和透射强度信号的减弱. 数据处理中将曲线 $(-, -)$ 归一化, 然后将曲线 (σ^+, σ^+) 和 (σ^+, σ^-) 分别乘以归一化曲线 $(-, -)$ 时的归一化系数. 三条曲线的具体物理意义可参考文献 [19,23].

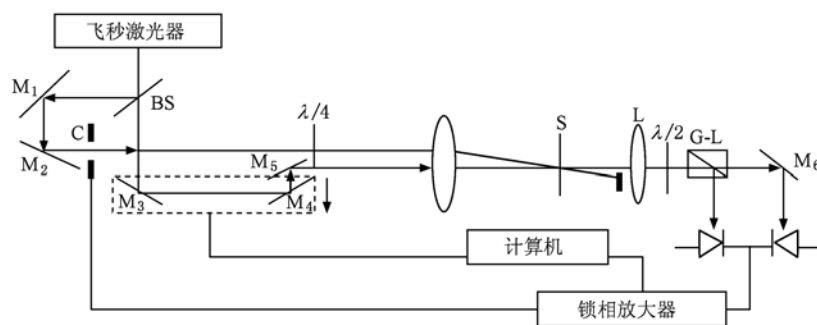


图 1 实验装置原理图 (BS 为分束镜; M₁—M₆ 为全反射镜; C 为斩波盘; $\lambda/2, \lambda/4$ 分别为半波片和四分之一波片; S 为样品; L 为聚焦透镜; G-L 为格兰棱镜)

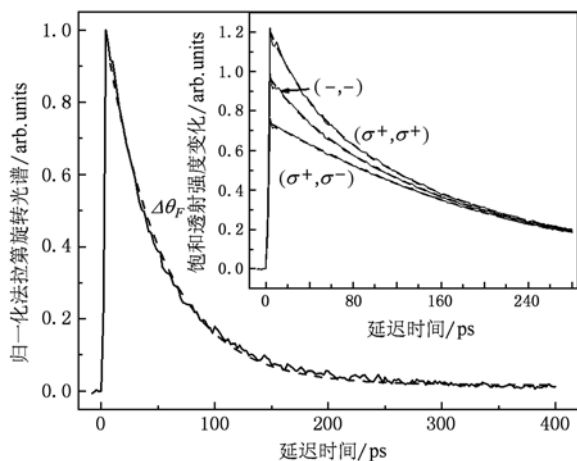


图2 法拉第旋转光谱和饱和和透射强度变化光谱($\Delta\theta_F$ 标识的实线和虚线分别为实验测量得到的归一化法拉第旋转光谱及拟合曲线. 插图中($\sigma^+\sigma^+$)和($\sigma^+\sigma^-$)标识的实线分别为同旋向和反旋向圆偏振光抽运-探测得到的饱和和透射强度变化曲线, 虚线为拟合曲线; (-, -)标识的实线和虚线分别为线偏振光抽运-探测得到的饱和和透射强度变化曲线及拟合曲线)

3. 理论模型

测量前通过 $\lambda/2$ 波片将 θ_0 调为 45° , 抽运光激发后, 探测光的偏振面偏转 $\Delta\theta_F$ 的角度, 如图 3 所示, 可得

$$\frac{I_A - I_B}{I_A + I_B} = \frac{A^2 - B^2}{A^2 + B^2} = \cos(90^\circ + 2\Delta\theta_F) \approx -\sin(2\Delta\theta_F) \approx -2\Delta\theta_F, \quad (2)$$

$$\Delta\theta_F = \frac{I_B - I_A}{2(I_A + I_B)}. \quad (3)$$

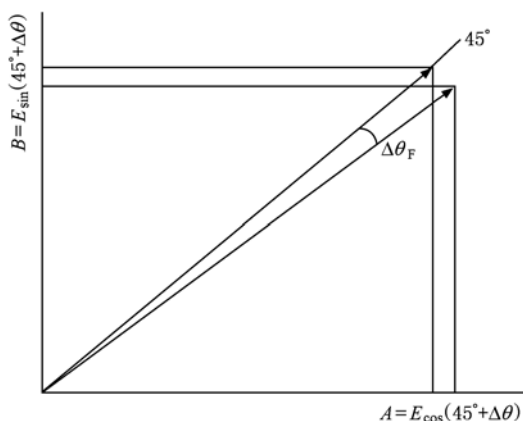


图3 探测光偏振面偏转示意图

将法拉第旋转光谱与抽运-探测技术结合, 用圆

偏振的抽运光激发某种自旋取向的电子后, 测量探测光的法拉第转角 $\Delta\theta_F$ 随时间 t 的变化, 便获得时间分辨法拉第旋转光谱.

设 $N_+(t)$, $N_-(t)$ 分别为 t 时刻二能级体系激发态上自旋取向向上和向下的电子布居数密度. 由于自旋弛豫和载流子复合, 此二能级体系的速率方程为^[24]

$$\frac{dN_+(t)}{dt} = -\frac{N_+(t)}{T_s} + \frac{N_-(t)}{T_s} - \frac{N_+(t)}{T_r}, \quad (4)$$

$$\frac{dN_-(t)}{dt} = -\frac{N_-(t)}{T_s} + \frac{N_+(t)}{T_s} - \frac{N_-(t)}{T_r}, \quad (5)$$

其中, T_r 和 T_s 分别为载流子的复合和自旋弛豫时间常数.

设 δ 脉冲圆偏振抽运光激发的自旋取向向上和向下的电子浓度分别为 N_+^0 和 N_-^0 , 那么, 初始时刻激发态总的电子浓度为 $N^0 = N_+^0 + N_-^0$, 将该初始条件代入方程(4) 得速率方程的解为^[5,24]

$$N_{\pm}(t) = \frac{N^0}{2}(1 \pm P_0 e^{-2t/T_s})e^{-t/T_r}, \quad (6)$$

其中, $P_0 = (N_+^0 - N_-^0)/N^0$ 为电子初始自旋偏振度.

考虑自旋偏振不平衡载流子布居后, 左、右旋圆偏振光的吸收是不同的, 小信号近似^[24] 条件下, 探测光左、右旋圆偏振分量的吸收系数 $\alpha_+(t)$ 和 $\alpha_-(t)$ 可分别表示为^[5,25,26]

$$\alpha_+(t) = \frac{3\alpha_0/4}{1 + \frac{N_+(t)}{N_+^s}} + \frac{\alpha_0/4}{1 + \frac{N_-(t)}{N_-^s}} \approx \frac{\alpha_0}{4} \left[4 - \frac{3N_+(t)}{N_+^s} - \frac{N_-(t)}{N_-^s} \right], \quad (7)$$

$$\alpha_-(t) = \frac{3\alpha_0/4}{1 + \frac{N_-(t)}{N_-^s}} + \frac{\alpha_0/4}{1 + \frac{N_+(t)}{N_+^s}} \approx \frac{\alpha_0}{4} \left[4 - \frac{3N_-(t)}{N_-^s} - \frac{N_+(t)}{N_+^s} \right], \quad (8)$$

其中, α_0 为没有抽运光作用的情况下光的线性吸收系数, N_+^s 和 N_-^s 分别为激发态自旋取向向上和向下的电子饱和布居密度^[24,27].

采用差分对管探测法拉第转角信号时, 拉第转角信号正比于探测光左右旋圆偏振分量的透射强度之差, 因此, 法拉第转角信号可表示为

$$\Delta\theta_F \propto \left| \frac{I_+^0 e^{-\alpha_+(t)L} - I_-^0 e^{-\alpha_-(t)L}}{I^0} \right| = \left[P_r \left(1 + \frac{\alpha_0 L N^0}{N^s} e^{-t/T_r} \right) \right]$$

$$+ \frac{\alpha_0 L N^0}{2N^s} P_0 e^{-2t/T_s} e^{-t/T_r} \Big], \quad (9)$$

其中, I_+ 和 I_- 分别为探测光入射于样品前左、右旋圆偏振分量所对应的光强, $I^0 = I_+^0 + I_-^0$ 为探测光总的入射光强, L 为样品厚度. P_r 为探测光的圆偏振度, $N^s = 2N_{\pm}^s$. 当入射探测光为线偏振光时, $P_r = 0$, 得到法拉第旋转光谱的模型

$$\Delta\theta_F = AP_0 e^{-2t/T_s} e^{-t/T_r}, \quad (10)$$

其中, A 为比例系数, 与材料本身以及抽运光的光强有关. 该模型表明电子寿命 T_r 的大小可以直接影响法拉第旋转信号随时间的衰减速度, 仅当 $T_r \gg T_s$ 时, 法拉第转角信号随时间的衰减才主要取决于电子自旋弛豫时间, 即电子-空穴对的复合对法拉第旋转信号随时间的衰减有重要影响. 首先从线偏振光抽运-探测得到的饱和吸收光谱中提取出电子寿命 T_r 并代入(10)式, 从而可利用该法拉第旋转光谱的模型拟合出较准确的 T_s 时间常数.

4. 实验结果讨论

利用单指数公式 $\Delta T/T = C \exp(-t/T_r)$ (其中, C 为比例系数, t 为时间) 对图 2 插图中(-, -)标识的实验曲线进行拟合, 拟合曲线如插图中虚线所示. 拟合得到的电子寿命 T_r 为 163.5 ps. 将拟合得到的电子寿命代入(10)式, 并利用该法拉第旋转光谱的模型拟合图 2 中 $\Delta\theta_F$ 标识的实验曲线, 拟合结果也显示在图中, 如虚线所示. 拟合得到的电子自旋弛豫时间 T_s 为 73.5 ps. 为了验证该自旋弛豫时间的准确性, 利用圆偏振光饱和吸收光谱的理论模型^[4,24] $(\Delta T/T)^{\pm} = \left[1 \pm \frac{1}{2} P_0 e^{-2t/T_s} \right] e^{-t/T_r}$ (其中, P_0 为电子初始自旋极化度, t 为时间, T_s 和 T_r 分别为电

子自旋弛豫寿命和电子寿命. $(\Delta T/T)^+$ 和 $(\Delta T/T)^-$ 分别为同旋向和反旋向圆偏振光抽运-探测得到的饱和透射强度变化) 拟合图 2 插图中 (σ^+, σ^+) 和 (σ^+, σ^-) 标识的实验曲线, 拟合曲线如图中虚线所示. 拟合得到的电子自旋弛豫时间 T_s 为 71.8 ps, 与我们利用法拉第旋转光谱法测量得到的自旋弛豫时间基本一致.

而直接利用单指数 $\Delta\theta_F = B e^{-t/T_s}$ (其中, B 为比例系数, t 为时间) 拟合图 2 中 $\Delta\theta_F$ 标识的实验曲线得到的电子自旋弛豫时间仅为 51.3 ps, 小于实际的电子自旋弛豫时间. 原因在于实验测量得到的法拉第旋转信号随时间的衰减, 既起源于自旋偏振度随时间的衰减又起源于载流子浓度随时间的衰减, 即二者随时间的衰减共同体现在法拉第旋转信号随时间的衰减上, 因此, 法拉第旋转信号随时间的衰减要比自旋偏振度的衰减快的多, 因而, 直接用单指数对法拉第旋转光谱进行拟合得到的电子自旋弛豫时间要比实际的自旋弛豫时间小的多.

5. 结 论

推导了圆偏振光激发的半导体中线偏振探测光探测到的法拉第旋转光谱的理论模型, 发现法拉第转角信号的衰减既起源于自旋偏振度随时间的衰减又起源于载流子浓度随时间的衰减, 并利用该模型对 GaAs 量子阱中实验测得的法拉第旋转光谱进行了拟合, 得到 GaAs 量子阱材料中的电子自旋弛豫时间为 73.5 ps, 大于直接利用单指数进行拟合得到的电子自旋弛豫时间, 从而说明直接利用单指数对法拉第旋转光谱进行拟合得到电子自旋弛豫时间的传统做法是不准确的.

[1] Zutic I, Fabian J, Das Sarma S 2004 *Rev. Mod. Phys.* **76** 323
 [2] Datta S, Das B 1990 *Appl. Phys. Lett.* **56** 665
 [3] Xie S J, Qin W, Zhang Y B 2010 *Chin. Phys. B* **19** 3564
 [4] Teng L H, Chen K, Wen J H, Lin W Z, Lai T S 2009 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42** 135111
 [5] Teng L H, Yu H L, Zuo F Y, Wen J H, Lin W Z, Lai T S 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6598 (in Chinese) [滕利华、余华梁、左方圆、文锦辉、林位株、赖天树 2008 物理学报 **57** 6598]
 [6] Tamborenea P I, Kuroda M A, Bottesi F L 2003 *Phys. Rev. B* **68** 245205

[7] Weng M Q, Wu M W 2003 *Phys. Rev. B* **68** 075312
 [8] Stich D, Zhou J, Korn T, Schulz R, Schuh D, Wegscheider W, Wu M W, Schüller C 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 176401
 [9] Kikkawa J M, Awschalom D D 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4313
 [10] Robb J L, Chen Y, Timmons A, Hall K C, Shchekin O B, Deppe D G 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 153118
 [11] Beschoten B, Halperin E J, Young D K, Poggio M, Grimaldi J E, Keller S, DenBarrs S P, Mishra U K, Hu E L, Awschalom D D 2001 *Phys. Rev. B* **63** 121202(R)
 [12] Sun Z, Xu Z Y, Yuan X Z, Ji Y, Sun B Q, Ni H Q 2007 *Acta*

- Phys. Sin.* **56** 2958 (in Chinese) [孙征、徐仲英、阮学忠、姬扬、孙宝权、倪海桥 2007 物理学报 **56** 2958]
- [13] Seymour R J, Alfano R R 1980 *Appl. Phys. Lett.* **37** 231
- [14] Gerlovin I Y, Dolgikh Yu K, Eliseev S A, Ovsyankin V V, Efimov Yu P, Ignatiev I V, Petrov V V, Verbin S. Yu, Masumoto Y 2004 *Phys. Rev. B* **69** 035329
- [15] Chen X X, Teng L H, Liu X D, Huang Q W, Wen J H, Lin W Z, Lai T S 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3853 (in Chinese) [陈小雪、滕利华、黄琦雯、文锦辉、林位株、赖天树 2008 物理学报 **57** 3853]
- [16] 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]
- [17] Tackeuchi A, Muto S, Inata T, Fujii T 1990 *Appl. Phys. Lett.* **56** 2213
- [18] Tackeuchi A, Wada O, Nishikawa Y 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 1131
- [19] Sun F W, Deng L, Shou Q, Liu L N, Wen J H, Lai T S, Lin W Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3196 (in Chinese) [孙丰伟、邓莉、寿倩、刘鲁宁、文锦辉、赖天树、林位株 2004 物理学报 **53** 3196]
- [20] Baumberg J J, Crooker S A, Awschalom D D 1994 *Phys. Rev. B* **50** 7689
- [21] Liu X D, Wang W Z, Gao R X, Zhao J H, Wen J H, Lin W Z, Lai T S 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3857 (in Chinese) [刘晓东、王玮竹、高瑞鑫、赵建华、文锦辉、林位株、赖天树 2008 物理学报 **57** 3857]
- [22] Proyr C E, Flatté M E 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 257901
- [23] Teng L H, Zhang P, Lai T S, Wu M W 2008 *Europhysics Letters* **84** 27006
- [24] Lai T S, Liu L N, Shou Q, Lei L, Lin W Z 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 4040
- [25] Lai T S, Liu X D, Xu H H, Jiao Z X, Lei L, Wen J H, Lin W Z 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 262110
- [26] Yu H L, Zhang X M, Teng L H, Wen J H, Lin W Z, Lai T S 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 3543 (in Chinese) [余华梁、张秀敏、滕利华、文锦辉、林位株、赖天树 2009 物理学报 **58** 3543]
- [27] Lai T S, Liu L N, Lei L, Shou Q, Li X Y, Wang J H, Lin W Z 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 0967 (in Chinese) [赖天树、刘鲁宁、雷亮、寿倩、李熙莹、王嘉辉、林位株 2005 物理学报 **54** 0967]

Effect of carrier recombination on time-resolved Faraday rotation spectroscopy in GaAs quantum wells^{*}

Teng Li-Hua[†] Wang Xia

(School of Mathematics and Physics, Qingdao University of Science and Technology, Qingdao 266061 China)

(Received 21 June 2010; revised manuscript received 12 August 2010)

Abstract

Based on the rate equations of a two-level system, time-resolved Faraday rotation spectroscopy model was developed. It was found that the carrier recombination has strong effect on the decay of Faraday rotation signal. The model was also used to fit the Faraday rotation spectra measured in GaAs quantum wells. The electron spin relaxation time was obtained as 73.5 ps. However, the spin relaxation time was obtained only as 51.3 ps with the single exponent to fit the Faraday rotation spectra. Thus, the conventional method with the single exponent to fit the Faraday rotation spectra is inaccurate.

Keywords: spin relaxation time, time-resolved Faraday rotation spectroscopy, GaAs quantum wells

PACS: 72.80.Ey, 72.25.Rb

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10974106), the Excellent Youth Foundation of Shandong Scientific Committee (Grant No. JQ201018), the Natural Science Foundation of Shandong Province of China (Grant No. ZR2009AZ002), the Startup Foundation of Qingdao University of Science and Technology (Grant No. 4000022428).

[†] E-mail: tenglihua76@gmail.com