物理学报 Acta Physica Sinica

Chinese Physical Society

Institute of Physics, CAS

自旋发光二极管研究进展

梁世恒 陆沅 韩秀峰

Research progress of spin light emitting diode

Liang Shi-Heng Lu Yuan Han Xiu-Feng

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 69, 208501 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200866

在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.69.20200866

当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

高效绿光钙钛矿发光二极管研究进展

Research progress of efficient green perovskite light emitting diodes

物理学报. 2019, 68(15): 158504 https://doi.org/10.7498/aps.68.20190647

磁性硅烯超晶格中电场调制的谷极化和自旋极化

Valley and spin polarization manipulated by electric field in magnetic silicene superlattice

物理学报. 2018, 67(8): 086801 https://doi.org/10.7498/aps.67.20180080

半导体黄光发光二极管新材料新器件新设备

Semiconductor yellow light-emitting diodes

物理学报. 2019, 68(16): 168503 https://doi.org/10.7498/aps.68.20191044

基于离子注入隔离的微缩化发光二极管阵列性能

Ion implantation isolation based micro-light-emitting diode device array properties

物理学报. 2020, 69(2): 027802 https://doi.org/10.7498/aps.69.20191418

蓝紫光发光二极管中的低频产生-复合噪声行为研究

Low-frequency generation-recombination noise behaviors of blue/violet-light-emitting diode

物理学报. 2019, 68(12): 128104 https://doi.org/10.7498/aps.68.20190189

基于N型纳米晶硅氧电子注入层的钙钛矿发光二极管

Perovskite light-emitting diodes based on n-type nanocrystalline silicon oxide electron injection layer

物理学报. 2019, 68(12): 128103 https://doi.org/10.7498/aps.68.20190258

专题：太赫兹自旋光电子

自旋发光二极管研究进展*

梁世恒 1)2) 陆沅 3)† 韩秀峰 1)4)‡

1) (中国科学院物理研究所, 北京 100190)

2) (湖北大学物理与电子科学学院, 武汉 430062)

3) (法国国家科学研究中心 Jean Lamour 研究所, 南希 54011)

4) (中国科学院大学材料科学与光电技术学院, 北京 100049)

(2020 年 6 月 7 日收到; 2020 年 7 月 17 日收到修改稿)

半导体自旋电子学是凝聚态物理研究中重要的研究领域之一, 在 20 多年的发展历程中交叉了多学科领域, 其中结合了磁性材料和半导体材料复合结构而开展的关于自旋注入、操纵及光学探测研究的自旋发光二极管展现出丰富的物理性质. 自旋发光二极管的研究涉及自旋注入端和激活区的材料、结构和物理. 本文将从自旋注入、自旋输运和自旋探测三个方面概述自旋发光二极管中所涉及的自旋相关物理, 并进一步介绍自旋发光二极管的研究历程及其最新结果进展, 最后进一步对未来研究趋势进行展望.

关键词： 半导体自旋电子学, 自旋发光二极管, 自旋极化, 自旋注入

PACS： 85.75.-d, 75.70.-I, 72.25.Dc, 72.25.Hg, 78.60.Fi **DOI：** 10.7498/aps.69.20200866

1 引 言

伴随着自旋电子学发展历程中一系列丰富物理效应的不断发现、以及材料结构和器件制备工艺的优化进步, 自旋电子器件应用取得了显著的进步. 例如, 以磁性隧道结 (magnetic tunnel junction, MTJ) 为核心结构的各类磁性传感器、磁性随机存储器 (MRAM) 已经在高科技产品应用中大放异彩. 同时, 关于半导体材料中自旋极化电子的注入和输运机制研究及半导体自旋电子器件的应用开发, 吸引了大量研究者的广泛关注. 自旋发光二极管 (spin light emitting diode, spin LED)[1] 正是这一类重要的半导体自旋电子器件, 其将电子自旋极化信息转换为圆偏振光信息予以表达. 虽然 spin LED 在光信息传输[2]、量子密码通信[3] 和三维显示[4] 等融合了自旋电子和半导体技术中具有较大的应用潜力, 但相比 MTJ 和磁性金属多层膜等体系, 基于半导体自旋电子的 spin LED 中的物理材料研究和器件应用还有待进一步发展和探索.

在 1999 年 spin LED 概念已被提出[5,6], 在 GaAs 基半导体异质结中利用顺磁半导体[5] 或者磁性半导体[6] 作为自旋注入端, 低温下通过自旋极化的载流子注入到半导体中, 自旋极化载流子在半导体激活区与空穴 (或电子) 复合产生左旋或右旋的圆偏振光, 以偏振光信息表达自旋量子信息. Spin LED 为读取半导体和量子阱 (点) 中自旋相干态的信息提供了可能. 但由于自旋注入效率及工作温度

* 国家重研发计划 (纳米计划)(批准号: 2017YFA0206200)、国家自然科学基金重点项目 (批准号: 51831012)、国家自然科学基金中法重点国际合作项目 (批准号: 51620105004)、中科院战略先导项目 (B 类) (批准号: XDB33000000)、中科院前沿科学重点研究计划 (批准号: QYZDJ-SSW-SLH016)、北京市自然科学基金 (批准号: Z201100004220006) 和法国科研署 (ANR) 与国家自然科学基金 SISTER 合作项目 (批准号: ANR-11-IS10-0001, NNSFC 61161130527) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yuan.lu@univ-lorraine.fr

‡ 通信作者. E-mail: xfhan@iphy.ac.cn

© 2020 中国物理学会 Chinese Physical Society

等问题, 在较长时间内困扰着 spin LED 的进一步发展. 为此, 半导体自旋电子学领域针对 spin LED 的研究历程也主要围绕着自旋注入端而开展, 以达到在零磁场下和室温条件下能够有效进行自旋注入来实现较大圆偏振光极化率. 为此, 本文将回顾 spin LED 的研究历程, 总结 spin LED 中自旋、电学和光学性质及其之间的物理关系; 介绍 spin LED 研究过程中所涉及的自旋注入端材料、结构和物理; 最后进一步对未来研究趋势进行展望.

2 自旋发光二极管

Spin LED 核心结构由两部分构成: 载流子复合发光区 (有源区, active region) 和自旋注入端 (spin-injector) 组成, 如图 1 所示. 通过自旋注入端将自旋极化的电子 (或空穴) 注入到半导体 LED 有源区, 根据光学选择定则与空穴 (电子) 复合产生左旋或者右旋的圆偏振光, 所发射的圆偏振光的极化率与注入的电子 (空穴) 的自旋极化率相关.

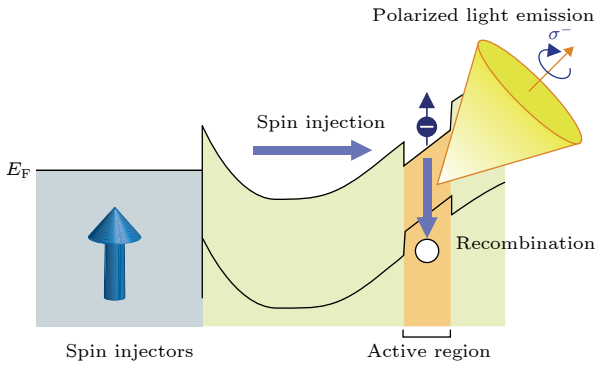

图 1 Spin LED 能带结构示意图[7]

Fig. 1. Schematic of band diagram of spin LED[7].

Spin LED 中圆偏振光可以通过电学注入以电致发光方式进行检测, 其测量系统如图 2 所示, 自旋极化电子注入所产生的圆偏振光通过聚焦准直后经过 1/4 玻片, 经线偏振片后进入单色仪, 然后在 CCD 上进行成像. 通过测量产生的左旋及右旋圆偏振发光强度 ($I(\sigma^+)$ 及 $I(\sigma^-)$), 即可得到电致发光圆偏振光极化率 P_c[8]:

$$P_c = \frac{I(\sigma^+) - I(\sigma^-)}{I(\sigma^+) + I(\sigma^-)}. \tag{1}$$

LED 中的载流子复合寿命和自旋弛豫时间则可通过偏振的时间分辨光致发光光谱进行检测. 在时间分辨光致发光光谱测量中, 通过将左旋 (右旋) 圆偏振激光照射到样品上, 根据光学选择定则可将电子和空穴分别激发到导带和价带, 形成激发态的自旋极化电子. 切断激发光源后, 激发态的极化电子会与空穴复合产生圆偏振光, 其测量系统如图 3 所示, 与电致发光测量系统不同在于, 其利用一超快激光通过偏振片后进行极化电子的激发. 利用该光致发光方法, 可以测量半导体中载流子寿命 τ、自旋弛豫时间 τ_s, 关系式如下[8]:

$$I_{PL} = a \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) + b, \tag{2}$$

$$P_c = c \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau_s}\right) + d, \tag{3}$$

其中, $I_{PL} = I_{PL}^{\sigma+} + I_{PL}^{\sigma-}$; $P_c = \dfrac{I_{PL}^{\sigma+} - I_{PL}^{\sigma-}}{I_{PL}^{\sigma+} + I_{PL}^{\sigma-}}$. 这里的 $I_{PL}^{\sigma+}$ ($I_{PL}^{\sigma-}$) 为左旋 (右旋) 圆偏振光致发光强度. 根据 (2) 式, (3) 式可得到半导体中 τ 及 τ_s.

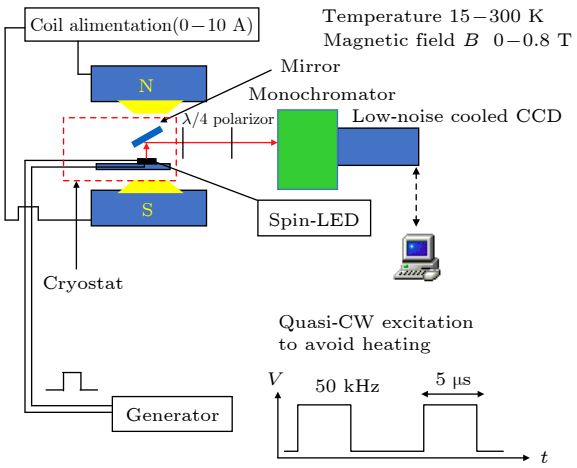

图 2 自旋发光二极管的电致发光中偏振光测量系统原理示意图

Fig. 2. Schematic diagram of electroluminescence measurement system for spin LED.

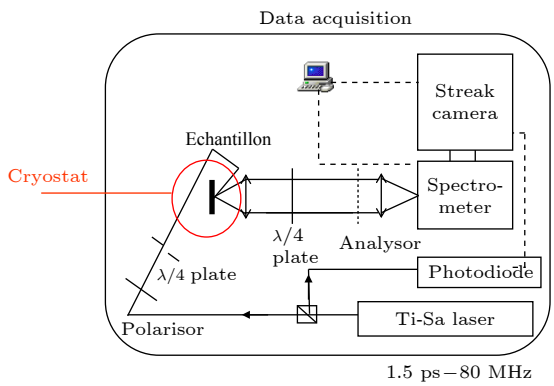

图 3 Spin LED 中时间分辨光致发光系统原理示意图

Fig. 3. Schematic diagram of time-resolved photoluminescence system.

3 自旋发光二极管中自旋相关物理

Spin LED 自旋相关物理主要涉及自旋注入、自旋输运和自旋探测, 理解这 3 个方面的物理机制和过程对于 Spin LED 的结构优化和器件设计至关重要.

3.1 自旋注入

自旋注入是指将自旋极化电流注入到非磁性金属或者半导体中. 首先要考虑怎样产生自旋极化电流, 目前主要有电学注入、光学注入及自旋霍尔效应等方法. 对于 spin LED 中的电致发光研究用到的是电学注入. 利用铁磁材料层作为自旋注入端, 电子在铁磁层内会进行自旋极化, 利用电学方法将自旋极化的电子从铁磁层注入到半导体中. 其次, 自旋注入中主要考虑的问题是自旋注入的效率, 自旋注入效率定义为注入的电子极化率与铁磁体自旋极化率的比值. 自旋注入层/半导体的界面质量、缺陷杂质和能带结构等因素都会对自旋进行散射从而影响到自旋的注入效率. 另外, 铁磁体与半导体的电导不匹配也会影响到自旋的注入效率.

最早研究的自旋发光二极管是基于"磁性半导体/半导体"结构, 如以 GaMnAs 和 ZnMnSe 等磁性半导体作为自旋注入端[5,6], 该结构的优点是能够避免电导不匹配的问题, 但是由于磁性半导体的居里温度较低, 其在室温下不能进行有效的自旋注入. 后来人们用到居里温度较高的铁磁体作为自旋注入端, 如"铁磁体/半导体"结构, 但由于存在严重的电导不匹配而不能实现较高的自旋注入效率. 为此 Rashba 提出[9] 用隧穿势垒层的方法, 即在铁磁体及半导体间插入势垒层构成"铁磁体/势垒层/半导体"结构, 从而解决了电导不匹配的问题, 因此在后续研究中自旋的注入效率得以显著提高.

3.2 自旋输运

自旋输运过程主要涉及电子在输运过程自旋弛豫等物理问题. 在 spin LED 中, 影响自旋输运过程的自旋弛豫机制主要有三种: Elliott-Yafet (EY) 机制、Dyakonov-Perel (DP) 机制和 Bir-Aronov-Pikus (BAP) 机制.

1954 年 Elliott[10] 研究表明, 材料中自旋轨道耦合可以将电子的波函数分为空间和时间反演对称的两个简并态: 一个为自旋向上态, 另一个为自旋向下态. 这种混合态会导致电子在动量散射过程中发生自旋翻转, 如电子-杂质散射和电子-声子散射等, 如图 4(a) 所示. EY 机制中对于 III-V 半导体 Γ 点附近的自旋弛豫 $(\tau_{\rm s}^{\rm EY})^{-1}$ 可以表述为[1]

$$\frac{1}{\tau_{\rm s}^{\rm EY}(E)} = A\left(\frac{k_{\rm B}T}{E_{\rm g}}\right)^2\left(\frac{\Delta}{E_{\rm g}+\Delta}\right)^2\frac{1}{\tau_{\rm p}(E)}, \tag{4}$$

其中, A 为散射常数, Δ 为材料中自旋轨道耦合的分裂能, $E_{\rm g}$ 为带隙, $\tau_{\rm p}(E)$ 是能量 E 上的电子动量散射时间. 在 EY 自旋弛豫机制中, 自旋弛豫率与电子的动能平方成正比, 与能隙平方成反比. 电子在 Γ 点时, 当其波矢 K 越大、价带和导带间的耦合越强时, 自旋翻转的几率越大. 所以对于能隙较大的半导体 (如 GaN, GaAs), EY 机制则不是自旋弛豫的主导机制.

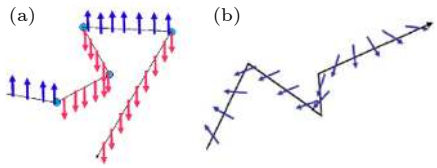

图 4 (a) EY 和 (b) DP 自旋弛豫机制示意图[11]

Fig. 4. Spin relaxation by scattering in (a) EY and (b) DP mechanisms[11].

DP 机制主要来源于半导体材料晶格结构的非对称中心反演特性, 它在 III-V 族半导体 (如 GaAs) 及 II-VI 族半导体中的自旋弛豫过程起主导作用[1]. 在非对称中心反演半导体材料中的电子会受到一个有效磁场的作用, 从而绕着该有效场进行 Larmor 进动. 该有效场的强度和方向依赖于电子的波矢 K, 具有较强的各向异性. 当电子发生动量散射时, 电子的进动频率及有效磁场也会发生改变, 从而导致电子自旋相位退相干, 如图 4(b) 所示. DP 机制的自旋弛豫率可以表述为[1]

$$\frac{1}{\tau_{\rm s}^{\rm DP}(E)} = Q\alpha^2\frac{(k_{\rm B}T)^3}{\hbar^2 E_{\rm g}}\tau_{\rm p}(E), \tag{5}$$

其中, Q 是散射因子, α 是依赖于自旋轨道相互作用强度的系数.

Soldat 等[12] 研究了室温下电子在 spin LED 中的自旋弛豫长度, 通过 FeTb/MgO 自旋注入端将自旋极化电子注入到 GaAs 有源区, 他们发现圆偏振光极化率随自旋注入层到有源发光区之间长度的增加而呈指数衰减. 为此可以通过拟合得到自旋弛豫长度 (如图 5 所示). 通过该实验得到的室温

下 GaAs 中电子自旋弛豫长度为 26 nm, 这与 Saikin 等[13] 基于 DP 自旋弛豫机制计算得到的 GaAs 中 25—50 nm 的自旋弛豫长度理论值一致.

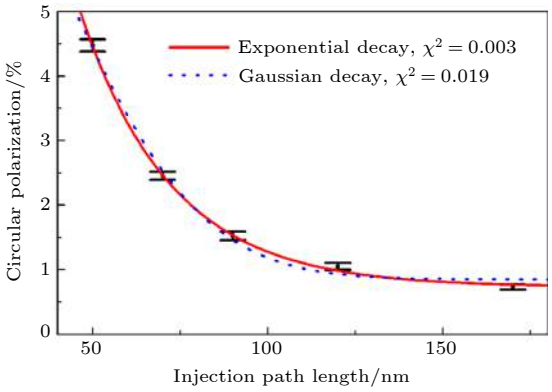

图 5 圆偏振光极化率随自旋注入层到有源发光区之间长度关系[12]

Fig. 5. Calculated circular polarization for fully perpendicular magnetization in remanence over injection path length[12].

此外, 比较 (4) 式和 (5) 式, 可以发现 DP 机制中自旋弛豫率 $1/\tau_{\rm s}^{\rm DP}(E)$ 正比于电子动量散射时间 $\tau_{\rm p}(E)$, 而 EY 机制中 $1/\tau_{\rm s}^{\rm EY}(E)$ 反比于 $\tau_{\rm p}(E)$. 因此, EY 机制中电子散射次数越多, 自旋弛豫率就越大; 而 DP 机制中, 电子散射不会导致自旋弛豫率的增大, 但散射会导致随波矢 K 相关的进动频率更加随机化, 而发生在碰撞间隙的自旋退相位相干性会随着频繁的碰撞而减弱.

BAP 机制来源于电子空穴的相互作用, 该机制在 p 型半导体中对于电子自旋的弛豫占主导作用. 当电子与空穴即将进行复合时, 电子和空穴间的散射会形成自旋交换作用, 因此当电子把自旋转移给空穴时, 会引起电子的自旋弛豫.

3.3 自旋探测

关于自旋探测有一系列方法, 包括磁电阻方法、自旋霍尔效应和 Hanle 效应的电探测方法、光致发光及电致发光的光探测等方法. Spin LED 正是利用了光探测以表达自旋信息. 根据光学选择定则, 当电子与空穴复合后所产生圆偏振光的极化率与电子 (空穴) 的自旋极化率直接相关, 如图 6 所示. 如对于 GaAs 半导体体材料, 由于重空穴是三重简并态, 轻空穴是单态, 所以电子与重空穴的复合几率是其与轻空穴复合几率的 3 倍, 电子空穴复合发光的圆偏振极化率为[1]

$$P_{\rm c} = \frac{I(\sigma^+) - I(\sigma^-)}{I(\sigma^+) + I(\sigma^-)} = \frac{(3n_\downarrow + n_\uparrow) - (3n_\uparrow + n_\downarrow)}{(3n_\downarrow + n_\uparrow) + (3n_\uparrow + n_\downarrow)} = \frac{n_\downarrow - n_\uparrow}{2(n_\uparrow + n_\downarrow)} = -\frac{P_{\rm E}}{2}, \tag{6}$$

其中, $I(\sigma^+)$ 和 $I(\sigma^-)$ 分别是圆偏振光 σ^+ 与 σ^- 的强度; $n_\uparrow$ 以及及 $n_\downarrow$ 为注入电子的自旋向上及自旋向下的态密度; $P_{\rm E} = \dfrac{n_\uparrow - n_\downarrow}{(n_\uparrow + n_\downarrow)}$ 为注入电子的自旋极化率.

对于量子阱结构如 $In_{1-x}Ga_xAs$/GaAs 量子阱, 由于结构限制及应变等约束作用, 其轻空穴能级下移与重空穴能级解除简并, 所以电子与轻空穴的复合被大大抑制. 此时, 电子空穴复合发光的圆偏振极化率为[1]

$$P_{\rm c} = \frac{I(\sigma^+) - I(\sigma^-)}{I(\sigma^+) + I(\sigma^-)} = \frac{3n_\downarrow - 3n_\uparrow}{3n_\downarrow + 3n_\uparrow} = \frac{n_\downarrow - n_\uparrow}{n_\uparrow + n_\downarrow} = -P_{\rm E}. \tag{7}$$

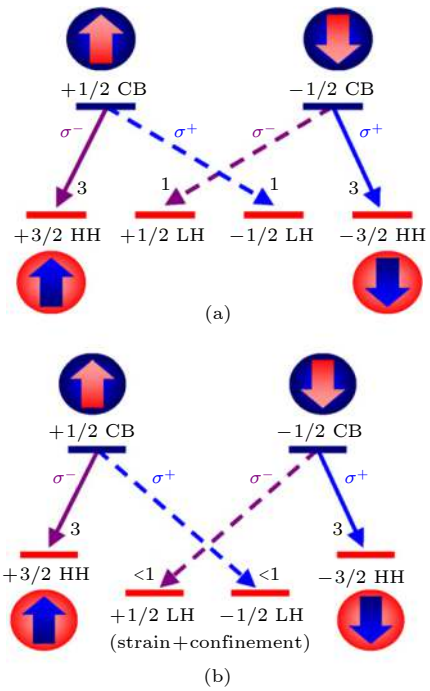

图 6 在闪锌矿 GaAs 直接带隙能带中的光选择定则 (a) 体材料及 (b) 量子阱中的电子空穴复合选择定则. 上边蓝色球代表电子, 下边的红色球代表空穴, 箭头代表自旋方向. 其中 CB 代表导带, HH 代表重空穴带, LH 代表轻空穴带, HH 是三重简并态, LH 是单态. σ^- 和 σ^+ 分别代表左旋光与右旋光. 在量子阱结构中由于晶格应变和结构限制, 电子与 LH 态空穴的复合几率被大大抑制[1]

Fig. 6. Electric dipole allowed radiative inter-band transitions and corresponding optical polarization for the cases of (a) bulk material with degenerate heavy- and light-hole bands and (b) a quantum well in which epitaxial strain and quantum confinement have lifted the heavy- and light-hole band degeneracy[1].

因此在基于 $In_{1-x}Ga_xAs$/GaAs 量子阱结构的 Spin LED 中, 理论上如果注入 100% 自旋极化电子, 将可以得到 100% 的圆偏光极化率.

上述 (6) 式和 (7) 式中考虑到的是理想情况, 实际电致发光的极化率 P_c 并不直接等于注入电子的极化率 P_E, P_E 与 P_c 之间的关系为[8]

$$P_c = F \times P_E, \tag{8}$$

其中, F 因子反映了半导体对注入到其中的电子自旋的影响, 它可由半导体中载流子寿命 τ 和电子自旋弛豫时间 τ_s 表示为[8]

$$F = 1/(1 + \tau/\tau_s). \tag{9}$$

这里以基于 GaAs 量子阱的自旋发光二极管[8]为例来进一步介绍自旋探测中圆偏振光极化率 P_c 与电学注入自旋极化率 P_E 的关系. 图 7(a) 显示了以 CoFeB/MgO 为自旋注入端制备的两个 spin LED 器件 P_c 随温度的变化关系. 它们有一共同的显著特征: 在 10 K 到 60 K 温度区间, 随着温度升高 P_C 先下降, 在 60 K P_C 达到最小值; 在 60 K 到 110 K 温度区间, 随着温度升高 P_C 增加. 通过时间分辨光致发光 (TRPL) 测量可以得到 τ_s 和 τ, 如图 7(b) 中插图所示. 根据 (9) 式可以得到 F 因子. 进一步通过比较温度依赖的 F 因子和温度依赖的 P_C 特性,

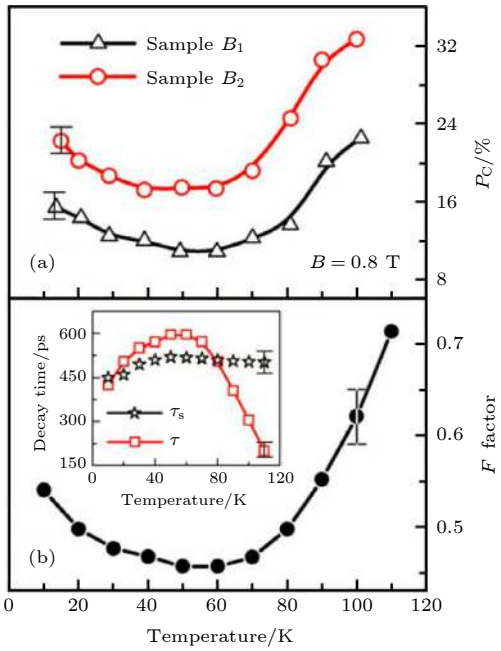

图 7 GaAs 量子阱自旋发光二极管中 (a) 温度依赖的 P_C 特性和 (b) 温度依赖的 τ_s, τ 及 F 因子特性[8]

Fig. 7. (a) Temperature dependence of P_C, (b) temperature dependence of τ_s, τ, and the F factor in GaAs quantum well spin LED[8].

发现在 GaAs 量子阱 spin LED 中, P_E 在 10—100 K 区间并不随温度发生变化. 因此通过自旋探测 P_C 随温度依赖特性, 可以研究半导体有源区对自旋弛豫的影响.

4 自旋注入端研究概况

4.1 面内磁各向异性自旋注入端

Spin LED 中自旋注入端有磁性半导体、铁磁性材料及磁性半金属等类型. 在较早的 spin LED 研究中, 主要使用的是磁性半导体 (如 GaMnAs, ZnMnSe, $CdCr_2Se_4$ 等)[5,6,14], 磁性半导体能够避免自旋注入层与发光区层的电导失配问题, 但由于磁性半导体的居里温度较低, 室温下则不能进行有效的自旋注入. 为此, 居里温度较高的铁磁金属被研究用于自旋注入端, 但是由于金属与半导体之间的电导失配, 自旋注入效率也较低. 在此之后, 人们发现在铁磁金属和半导体间插入势垒层构成"铁磁体/势垒层/半导体"结构, 可以解决电导不匹配的问题, 从而大大提高自旋注入效率. 目前在 CoFe/MgO/GaAs 半导体量子阱结构中, 在室温下已经观测到了 32% 的圆偏振光极化率[15]. 这里, 我们将重点介绍以铁磁金属材料为自旋注入端的 spin LED 研究进展.

2001 年, Zhu 等[16] 在以 Fe 为自旋注入端、InGaAs 量子阱为发光区的结构中, 在室温 300 K 下观测到 2% 的电致发光极化率. 2005 年, Jiang 等[15] 在基于 CoFe/MgO 为自旋注入端, 通过利用 MgO 势垒及 CoFe 的高自旋极化率实现较高自旋极化率的电子注入, 他们在以 GaAs 量子阱为发光区的结构中低温下观测到高达 52% 的电致发光极化率. 2008 年 Ikeda 等[17] 于室温在 CoFeB/MgO/CoFeB 磁性隧道结中观测到高达 600% 的 TMR, 这说明 CoFeB/MgO 可以提供具有更高的隧穿电子自旋极化率, 同年 Lu 等[8] 在基于面内磁各向异性 CoFeB/MgO 自旋注入端、以 GaAs 量子阱为发光区的结构中, 低温下观测到了 32% 的电致发光极化率. 此后, Barate 等[18] 通过对比磁控溅射和分子束外延制备的不同界面质量自旋注入端, 证明了 CoFeB/MgO 界面对于自旋电子注入起到关键的影响作用. 表 1 给出了基于面内磁各向异性自旋注入端的 spin LED 研究的主要历程中自旋注入端材料结构及对应的圆偏振光极化率结果.

表 1 基于面内磁各向异性自旋注入端的自旋发光二极管

Table 1. Spin LED based on spin injector with in-plane magnetic anisotropic.

自旋注入端	LED结构	P_C/T	文献	时间
Fe	InGaAs QW	2%/300 K	Zhu等[16]	2001
Fe/(Al)GaAs	GaAs QW	32%/4.5 K	Hanbicki等[19]	2002
$CoFe/Al_2O_3$	GaAs bulk	21%/80 K	Motsnyi等.[20]	2002
CoFe/MgO	GaAs QW	52%/100 K	Jiang等[15]	2005
Co/Al_2O_3	InAs QD	15%/1.7 K	Lombez等[21]	2007
CoFeB/MgO	GaAs QW	32%/100 K	Lu等[8]	2008
Fe/AlO_x	GaAs QW	18%/80 K	Wu等[22]	2010
CoFeB/MgO	GaAs QW	25%/25 K	Barate等[18]	2014
CoFeB/MgO	GaAs QW	23%(Sputtering), 18%(MBE)/25 K	Barate等[23]	2017

4.2 垂直磁各向异性自旋注入端

如果自旋注入端磁矩位于面内方向, 根据光选择定则, 需要在沿薄膜法线方向施加磁场使自旋注入端的磁矩位于垂直膜面方向, 才可以在法向方向测量所产生光的圆偏振极化率, 如图 8 所示.

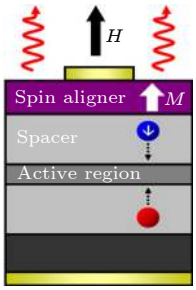

图 8 自旋发光二极管的 Faraday 测试方法示意图[1]

Fig. 8. Schematic representation of a spin LED under the Faraday geometries[1].

由于需要外加磁场设备提供垂直膜面方向的磁场, 这在实际应用中十分不便. 为此更加突显具有垂直磁各向异性的自旋注入端的优势, 即在不施加垂直磁场的情况下, 自旋注入端的磁矩就垂直于薄膜膜面. 2005 年, Gerhardt 等[24] 利用具有垂直磁各向异性的 FeTb 作为自旋注入端, 他们在零磁场 90 K 下得到了 0.7% 的圆偏振光极化率, 如图 9 所示. 此后 Adelmann 等[25]、Hövel 等[26]、Grenet 等[27] 及 Zarpellon 等[28] 等分别利用具有垂直磁各向异性的 MnGa, FeTb, CoPt 等作为自旋注入端, 成功制备了具有垂直磁各向异性自旋特性的 spin LED (圆偏振光极化率见表 2).

虽然上述报道实现了基于垂直磁各向异性自旋注入端的自旋极化电子注入, 但是自旋注入效率较低 (圆偏振率小于 3%). 研究人员思考和设计更加优化的垂直磁各向异性自旋注入端: 自旋极化率越高越好、厚度越薄越好. 自旋极化率高可以使得注入到二极管半导体中的电子自旋极化率较高; 薄膜自身厚度越薄其对发出光的吸收就越少, 这样 spin LED 发出光的强度就越强, 同时由于铁磁金属引起的磁圆二色性也会越小. 2014 年, Liang 等[29]

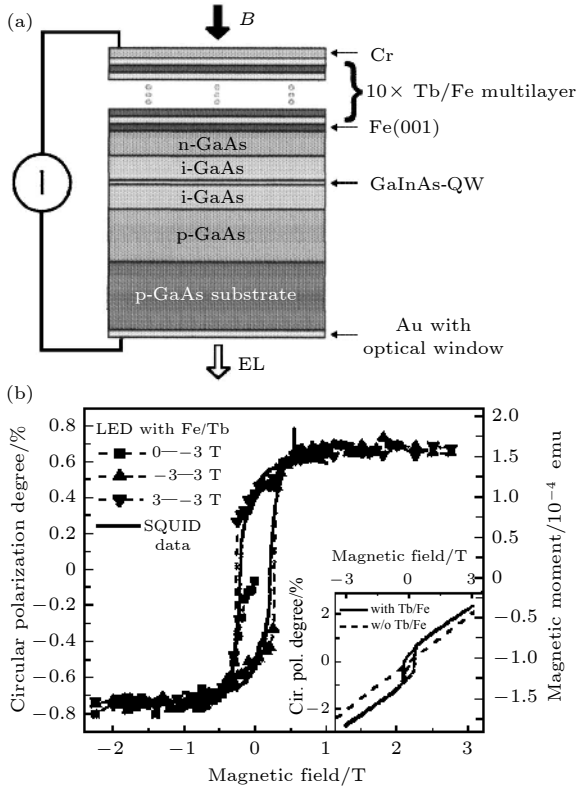

图 9 Gerhardt 等[24] 利用具有垂直磁各向异性的 FeTb 作为自旋注入端的自旋发光二极管 (a) 结构示意图; (b) 电致发光与磁场的关系, 他们在未加磁场剩余磁态下, 在 90 K 下得到了 0.7% 的圆偏振光极化率

Fig. 9. Schematic Spin LED device structure of the LED with Tb/Fe multilayer (a) reported by Gerhardt et al.[24], Circular polarization as a function of the applied magnetic field at 90 K (b), they observed P_C of 0.7%.

表 2 基于垂直磁各向异性的自旋注入端的自旋发光二极管

Table 2. Spin LED based on spin injector with out-plane magnetic anisotropic.

自旋注入端	LED结构	P_C/T	文献	时间
FeTb	InGaAs QW	0.75%/90 K	Gerhardt等[24]	2005
MnGa	AlGaAs QW	~3%/20 K	Adelmann等[25]	2006
FeTb	AlGaAs QW	~3%/300 K	Hövel等[26]	2008
CoPt	SiGe QW	~3%/5 K	Grenet等[27]	2009
CoPt	GaAs QW	~2.5%/20 K	Zarpellon等[28]	2012
Ta/CoFeB/MgO	GaAs QW	~20%/25 K, ~8%/RT	Liang等[29]	2014
MgO/CoFeB/Ta/CoFeB/MgO	GaAs QW	~10%/10 K	Tao等[30]	2016
Mo/CoFeB/MgO	GaAs QW	~9.5%/10 K	Tao等[31]	2018
Ta/CoFeB/MgO	GaAs QD	35%/9 K	Cadiz等[32]	2018

报道了采用界面诱导的垂直磁各向异性 Ta/CoFeB/MgO 自旋注入端的自旋发光二极管 (如图 10 所示). 相比于先前的结果, 由于 CoFeB 具有较高的自旋极化率, 并且所用到的 CoFeB 厚度也较薄 (约 1.2 nm), 在零磁场下测量到低温 (10 K)13% 和室温下 8%的圆偏振光极化率. 他们同时研究了温度依赖 P_C特性, 发现在温度小于 100 K 时, P_C 随着温度的增加而显著降低, 而当温度大于 100 K 后, P_C基本趋于稳定. 通过利用时间分辨的光致发光测量得到的 GaAs 半导体量子阱中载流子寿命τ_S以及及电子自旋弛豫时间τ, 如图 10 (c) 所示, 发现 F 因子与电致发光极化率P_C随温度变化的趋势较为一致. 由 $P_E = P_C/F$ 计算的零磁场下注入电子的自旋极化率P_E与温度T的关系, 从图 10 (b) 可以看到, 注入电子的P_E随着温度变化基本保持稳定, 其自旋极化率约为16%. 这说明P_C随温度的变化主要是来自于 GaAs 半导体量子阱性质随温度的变化, 而自旋注入端在低温 25 K 到室温范围内注入到 GaAs 半导体量子阱的电子自旋极化率基本不变.

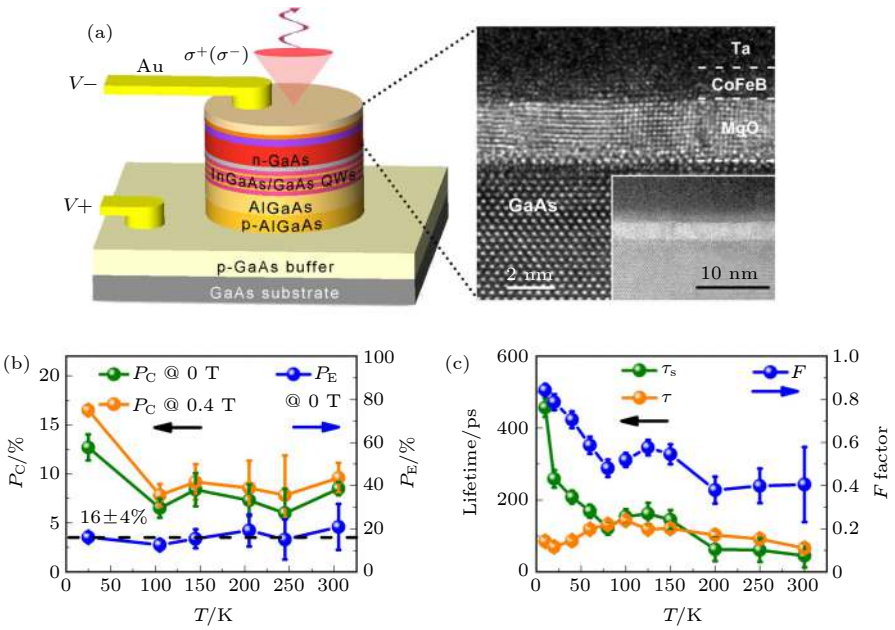

图 10 (a) 基于垂直磁各向异性 Ta/CoFeB/MgO 为自旋注入端的自旋发光二极管结构示意图, 虚线选定区对应的 TEM 照片, 其中插图为缩小后的 TEM 照片; (b) 温度依赖的圆偏振极化率及注入电子极化率; (c) 温度依赖的 F 因子及载流子寿命 τ 、电子自旋弛豫时间 τ_s

Fig. 10. (a) Schematic device structure of Spin LED and HR-TEM image of CoFeB/MgO PMA injector; (b) temperature dependence of P_C without magnetic field and with 0.4 T field. Temperature dependence of P_E is calculated by $P_E = P_C/F$ from the data without field; (c) temperature dependence of τ_S, τ, and F factor deduced from the TRPL measurements.

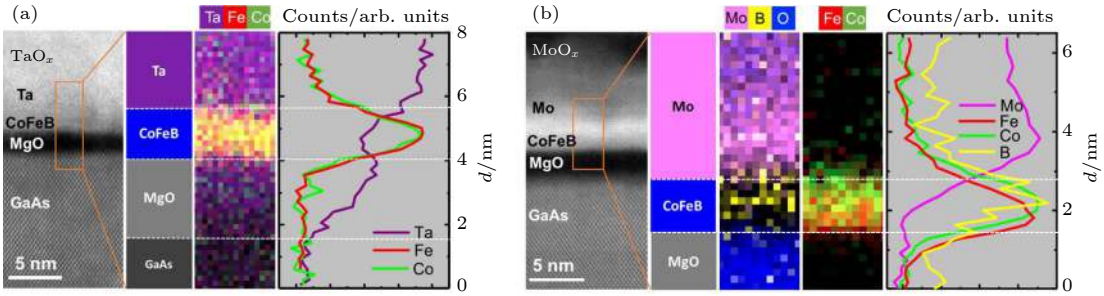

图 11 退火 400 °C 后, 具有垂直磁各向异性的 Ta/CoFeB/MgO (a) 和 Mo/CoFeB/MgO (b) 自旋注入端中由 HR-STEM-EELS 测量的空间元素分布[31]

Fig. 11. Chemical characterization of spin-injectors annealed at 400 °C. Dark field HR-STEM images and corresponding EELS mappings and profiles for (a) Ta and (b) Mo injectors annealed at 400 °C[31].

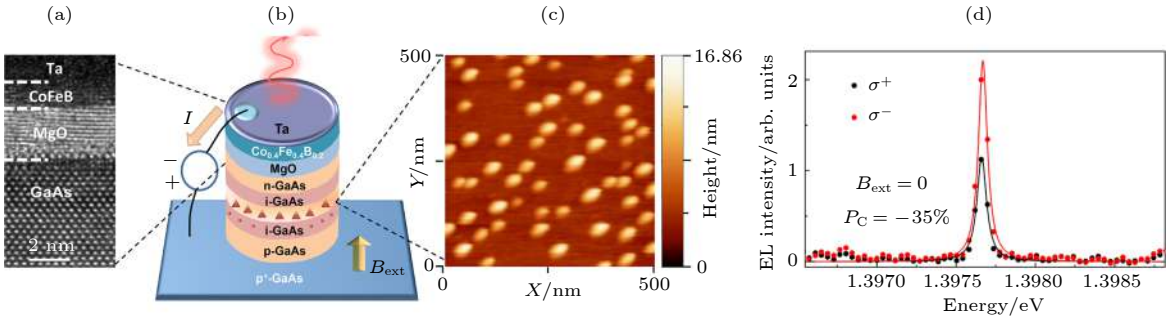

图 12 (a), (b) 基于垂直各向异性的 Ta/CoFeB/MgO 作为自旋注入端 InGaAs/GaAs 量子点 spin LED 的 TEM 及其结构示意图; (c) InGaAs/GaAs 量子点 AFM 图; (d) 零磁场下 9 K 观测到了约 35% 电致发光圆偏振光极化率[32]

Fig. 12. Spin LED device with p-doped InAs/GaAs quantum dots and polarization resolved electroluminescence of an ensemble of quantum dots: (a) High resolution-transmission electron microscope image of the injector Ta/CoFeB/MgO/GaAs; (b) schematic structure of the spin LED device. A single layer of InAs QDs is embedded in the intrinsic region of the p-i-n junction of the LED; (c) AFM image of InAs QDs; (d) strongly polarized single dot emission at zero applied field[32].

2018 年, Tao 等[31] 利用具有垂直各向异性的 Mo/CoFeB/MgO 作为自旋注入端, 通过利用高分辨扫描透射电镜 (HR-STEM) 及电子能量损失谱 (EELS), 从原子尺度分析了利用 Ta 和 Mo 作为覆盖层的垂直磁各向异性自旋注入层的结构和化学性质. 相比较 Ta/CoFeB/MgO 自旋注入端, Mo/CoFeB/MgO 中 CoFeB 层元素与 Mo 元素不会相互扩散 (如图 11 所示), 因此其磁学性能具有耐高温退火稳定性 (400 °C 以内), 并且注入的电子可以保持较高的自旋极化状态. 2018 年, Cadiz 等[32] 利用具有垂直磁各向异性的 Ta/CoFeB/MgO 作为自旋注入端, 同时优化了 spin LED 有源区的结构设计, 采用 p 型 InGaAs 量子点, 在零磁场下观测到单量子点~35% 圆偏振光极化率 (如图 12 所示), 这是迄今为止采用垂直各向异性自旋二极管观测到的最好的结果. 表 2 给出了基于垂直磁各向异性自旋注入端的 spin LED 研究历程中主要的自旋注入端材料、结构及对应的圆偏振光极化率结果.

5 总结及展望

自旋电子注入效率的提高使得 spin LED 的圆偏振光极化率得到了提升, 这对于 spin LED 的器件未来应用至关重要. Spin LED 的未来研究仍将包括物理、材料和器件结构等几个方面. 实现室温零磁场下自旋注入仍将是 spin LED 重点研究内容之一. 在基于垂直磁各向异性的自旋注入端研究中, 未来探索在保证较高自旋注入效率和圆偏振光极化率的基础上, 若在 spin LED 自旋注入端中能够利用自旋轨道转矩驱动垂直磁各向异性磁化强度 (磁矩) 的翻转, 则有望进一步提升 spin LED 的工作性能. 另外采用新材料 (如:具有丰富半导体性质的低维材料及其异质结构) 应用到 spin LED 有源区, 则可以调制发光频率区间以进一步拓展 spin LED 的应用范围.

伴随着自旋电子学发展的同时, spin LED 的研究范围也不断地在拓展, 尤其是第三代半导体材

料和低维半导体材料可以在其中发挥重要作用. 其中 GaN 不但具有较大的能隙 (室温下约 3.4 eV), 而且具有较弱的自旋轨道耦合 ($\Delta_{so} \approx 15$ meV)[33], 因此 GaN 中的自旋弛豫时间 (5 K 温度下约 20 ns; 室温下约几百 ns)[34] 比 GaAs 中的自旋弛豫时间大 3 个数量级 (10 K 温度下约 500 ps)[8,35]. 较长的自旋相干时间也为 GaN 在半导体自旋电子器件中的应用提供了优势. 最近基于 GaN 基的可见光 spin LED 和自旋激光器 (spin lasers) 已被研究报道[36–42]. 在该类 spin LED 和自旋激光器中, 室温下已分别实现 6%[40] 及 25%[41] 圆偏振光极化率. 此外, 二维材料由于新奇的物理性质也受到了广泛关注, 2016 年 Ye 等[43] 利用电学注入方式实现了从具有垂直磁各向异性的 GaMnAs 中将自旋极化的空穴注入到 WS_2 中, 实现了基于二维材料的 spin LED, 如图 13 所示. 同年 Sanchez 等[44] 实现了基于 MoS_2/WeS_2 异质结构为有源区的 spin LED.

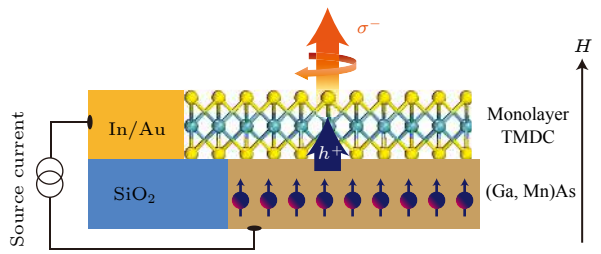

图 13 基于 (Ga, Mn)As 自旋注入端、MoS_2/WeS_2 有源区的自旋发光二极管结构示意图[43]

Fig. 13. Schematic of the monolayer TMDC/(Ga, Mn)As heterojunction for electrical valley polarization devices. (Ga, Mn)As was used as a spin aligner under an external magnetic field[43].

综上所述, 未来通过对 spin LED 器件自旋注入端及其有源区的进一步深入系统研究和优化, 自旋发光二级管的器件功能特性将在自旋-光信息传输与显示方面展现出巨大的应用价值和发展前景.

参考文献

[1] Holub M, Bhattacharya P 2007 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40** R179

[2] Farshchi R, Ramsteiner M, Herfort J, Tahraoui A, Grahn H T 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 162508

[3] Asshoff P, Merz A, Kalt H, Hetterich M 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 112106

[4] Kim D Y 2006 *J. Korean Phys. Soc.* **49** S505

[5] Fiederling R, Keim M, Reuscher G, Ossau W, Schmidt G, Waag A, Molenkamp L W 1999 *Nature* **402** 787

[6] Ohno Y, Young D K, Beschoten B, Matsukura F, Ohno H, Awschalom D D 1999 *Nature* **402** 790

[7] Taniyama T, Wada E, Itoh M, Yamaguchi M 2011 *NPG Asia Mater.* **3** 65

[8] Lu Y, Truong V G, Renucci P, Tran M, Jaffrès H, Deranlot C, George J M, Lemaître A, Zheng Y, Demaille D, Binh P H, Amand T, Marie X 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 152102

[9] Rashba E I 2000 *Phys. Rev. B* **62** R16267

[10] Elliott R J 1954 *Phys. Rev.* **96** 266

[11] Zhao F 2010 *Ph. D Thesis* (France: University of Toulouse)

[12] Soldat H, Li M, Gerhardt N C, Hofmann M R, Ludwig A, Ebbing A, Reuter D, Wieck A D, Stromberg F, Keune W, Wende H 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 051102

[13] Saikin S, Shen M, Cheng M C 2006 *J. Phys. Condens. Matter* **18** 1535

[14] Young D K, Johnston-Halperin E, Awschalom D D, Ohno Y, Ohno H 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 1598

[15] Jiang X, Wang R, Shelby R M, Macfarlane R M, Bank S R, Harris J S, Parkin S S P 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 056601

[16] Zhu H J, Ramsteiner M, Kostial H, Wassermeier M, Schönherr H P, Ploog K H 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 016601

[17] Ikeda S, Hayakawa J, Ashizawa Y, Lee Y M, Miura K, Hasegawa H, Tsunoda M, Matsukura F, Ohno H 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 082508

[18] Barate P, Liang S, Zhang T T, Frougier J, Vidal M, Renucci P, Devaux X, Xu B, Jaffrès H, George J M, Marie X, Hehn M, Mangin S, Zheng Y, Amand T, Tao B, Han X F, Wang Z, Lu Y 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 012404

[19] Hanbicki A T, Jonker B T, Itskos G, Kioseoglou G, Petrou A 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 1240

[20] Motsnyi V F, De Boeck J, Das J, Van Roy W, Borghs G, Goovaerts E, Safarov V I 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 265

[21] Lombez L, Braun P F, Renucci P, Gallo P, Carrère H, Binh P H, Marie X, Amand T, Gauffier J L, Urbaszek B, Arnoult A, Fontaine C, Deranlot C, Mattana R, Jaffrès H 2007 *Phys. Status Solidi C* **4** 567

[22] Wu H, Zheng H, Liu J, Li G, Xu P, Zhu H, Zhang H, Zhao J 2010 *Sci. China Phys. Mech.* **53** 649

[23] Barate P, Liang S H, Zhang T T, Frougier J, Xu B, Schieffer P, Vidal M, Jaffrès H, Lépine B, Tricot S, Cadiz F, Garandel T, George J M, Amand T, Devaux X, Hehn M, Mangin S, Tao B, Han X F, Wang Z G, Marie X, Lu Y, Renucci P 2017 *Phys. Rev. Appl.* **8** 054027

[24] Gerhardt N C, Hövel S, Brenner C, Hofmann M R, Lo F Y, Reuter D, Wieck A D, Schuster E, Keune W, Westerholt K 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 032502

[25] Adelmann C, Hilton J L, Schultz B D, McKernan S, Palmstrøm C J, Lou X, Chiang H S, Crowell P A 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 112511

[26] Hövel S, Gerhardt N C, Hofmann M R, Lo F Y, Ludwig A, Reuter D, Wieck A D, Schuster E, Wende H, Keune W, Petracic O, Westerholt K 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 021117

[27] Grenet L, Jamet M, Noé P, Calvo V, Hartmann J M, Nistor L E, Rodmacq B, Auffret S, Warin P, Samson Y 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 032502

[28] Zarpellon J, Jaffrès H, Frougier J, Deranlot C, George J M, Mosca D H, Lemaître A, Freimuth F, Duong Q H, Renucci P, Marie X 2012 *Phys. Rev. B* **86** 205314

[29] Liang S H, Zhang T T, Barate P, Frougier J, Vidal M, Renucci P, Xu B, Jaffrès H, George J M, Devaux X, Hehn M, Marie X, Mangin S, Yang H X, Hallal A, Chshiev M, Amand T, Liu H F, Liu D P, Han X F, Wang Z G, Lu Y 2014 *Phys. Rev. B* **90** 085310

[30] Tao B S, Barate P, Frougier J, Renucci P, Xu B, Djeffal A,

Jaffrès H, George J M, Marie X, Petit-Watelot S, Mangin S, Han X F, Wang Z G, Lu Y 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 152404

[31] Tao B, Barate P, Devaux X, Renucci P, Frougier J, Djeffal A, Liang S, Xu B, Hehn M, Jaffrès H, George J M, Marie X, Mangin S, Han X, Wang Z, Lu Y 2018 *Nanoscale* **10** 10213

[32] Cadiz F, Djeffal A, Lagarde D, Balocchi A, Tao B, Xu B, Liang S, Stoffel M, Devaux X, Jaffres H, George J M, Hehn M, Mangin S, Carrere H, Marie X, Amand T, Han X, Wang Z, Urbaszek B, Lu Y, Renucci P 2018 *Nano Lett.* **18** 2381

[33] Kyrychenko F V, Stanton C J, Abernathy C R, Pearton S J, Ren F, Thaler G, Frazier R, Buyanova I, Bergman J P, Chen W M 2005 *AIP Conf. Proc.* **772** 1319

[34] Beschoten B, Johnston-Halperin E, Young D K, Poggio M, Grimaldi J E, Keller S, DenBaars S P, Mishra U K, Hu E L, Awschalom D D 2001 *Phys. Rev. B* **63** 121202

[35] Krishnamurthy S, van Schilfgaarde M, Newman N 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 1761

[36] Buyanova I A, Izadifard M, Chen W M, Kim J, Ren F, Thaler G, Abernathy C R, Pearton S J, Pan C C, Chen G T, Chyi J I, Zavada J M 2005 *AIP Conf. Proc.* **772** 1399

[37] Ham M H, Yoon S, Park Y, Bian L, Ramsteiner M, Myoung J M 2006 *J. Phys. Condens. Matter* **18** 7703

[38] Banerjee D, Adari R, Sankaranarayan S, Kumar A, Ganguly S, Aldhaheri R W, Hussain M A, Balamesh A S, Saha D 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 242408

[39] Chen J Y, Ho C Y, Lu M L, Chu L J, Chen K C, Chu S W, Chen W, Mou C Y, Chen Y F 2014 *Nano Lett.* **14** 3130

[40] Bhattacharya A, Baten Z, Frost T, Bhattacharya P 2017 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **29** 338

[41] Bhattacharya A, Baten M Z, Iorsh I, Frost T, Kavokin A, Bhattacharya P 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 067701

[42] Chen J Y, Wong T M, Chang C W, Dong C Y, Chen Y F 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 845

[43] Ye Y, Xiao J, Wang H, Ye Z, Zhu H, Zhao M, Wang Y, Zhao J, Yin X, Zhang X 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 598

[44] Sanchez O L, Ovchinnikov D, Misra S, Allain A, Kis A 2016 *Nano Lett.* **16** 5792

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Research progress of spin light emitting diode*

Liang Shi-Heng [1)2)] Lu Yuan [3)†] Han Xiu-Feng [1)4)‡]

1) (*Institute of Physics*, *Chinese Academy of Sciences*, *Beijing* 100190, *China*)

2) (*Faculty of Physics and Electronic Science*, *Hubei University*, *Wuhan* 430062, *China*)

3) (*Institute Jean Lamour*, *Centre National de la Recherche Scientifique*, *Nancy* 54011, *France*)

4) (*Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering*, *University of Chinese Academy of Sciences*, *Beijing* 100049, *China*)

(Received 7 June 2020; revised manuscript received 17 July 2020)

Abstract

After more than 20 years of development, semiconductor spintronics has become an important and interdisciplinary research filed of spin-based physics, materials and phenomenon. Spin light emitting diode (spin LED) is one of the fascinating topics in semiconductor spintronic, and it is also one of devices in which the radiative recombination of spin-polarized carriers results in luminescence exhibiting a net circular polarization. The research of spin LED involves the studies of materials, structures, and spin based physics in spin injector and active region. The spin injection, spin transport, and spin detection are key factors for understanding the spin based physics in spin LED. Here in this paper, we comprehensively review the current research status and the latest results. Finally, we also discuss the future research trend.

Keywords: semiconductor spintronics, spin LED, spin polarization, spin injection

PACS: 85.75.-d, 75.70.-I, 72.25.Dc, 72.25.Hg, 78.60.Fi **DOI:** 10.7498/aps.69.20200866

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2017YFA0206200), the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51831012), the Key Joint Program of China-France of the National Natural Science Foundation (Grant No. 51620105004), the Strategic Priority Research Program (B) of Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDB33000000), the Key Research Program of Frontier Sciences and the International Partnership Program of Chinese Academy of Sciences (Grant No. QYZDJ-SSW-SLH016), the Beijing Natural Science Foundation of China (Grant No. Z201100004220006), and the Joint ANR-NSFC SISTER Project (Grant Nos. ANR-11-IS10-0001, NNSFC61161130527).

† Corresponding author. E-mail: yuan.lu@univ-lorraine.fr

‡ Corresponding author. E-mail: xfhan@iphy.ac.cn