

本征 GaAs 中电子自旋极化对电子复合动力学的 影响研究*

滕利华 余华梁 黄志凌 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 物理科学与工程学院 广州 510275)

(2008 年 1 月 8 日收到 2008 年 2 月 22 日收到修改稿)

采用时间分辨圆偏振光和线偏振光抽运-探测光谱,研究了 9.6 K 温度下本征 GaAs 中自旋极化电子与非极化电子的复合动力学及其随光子能量演化.发现自旋极化对电子复合动力学具有显著影响.仅在导带底附近测量时,两种方法测试到的复合寿命一致,而在高过超能量电子态测量时,两种方法测试到的复合寿命不一致.指出时间分辨法拉第光谱中,用于反演求解电子自旋相干寿命的电子复合寿命应该使用圆偏振光抽运-探测获得的复合寿命,而不是线偏振光抽运-探测获得的寿命.理论计算与实验结果吻合较好.

关键词:圆偏振光抽运-探测光谱,自旋量子拍,自旋极化, GaAs

PACC: 7847, 6740F, 7730, 7280E

1. 引 言

半导体自旋电子器件以低功耗、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.人们已经提出了自旋晶体管模型^[1]和利用电子自旋量子位进行量子计算的设想^[2].然而,这些应用都依赖于长寿命自旋极化和相干弛豫的获得.因此,半导体中电子自旋极化和相干弛豫动力学及其随材料结构、环境因素的变化研究已成为国际上一个活跃的研究领域^[3-8].另一方面,电子自旋极化是否会反过来对电子的动力学行为,包括自旋相关和无关的动力学行为产生影响?近年来也开始受到人们的关注. Weng 等人^[4]首先在理论上预言了 n-GaAs 量子阱中电子自旋极化度会对电子自旋退相干动力学产生显著影响. Stich 等人^[5]从实验上证实了 Weng 等人的预言.然而,电子自旋极化是否会对电子复合动力学产生影响目前尚不清楚,也未见相关研究报道.但这是一个重要的问题,因为它直接影响到时间分辨法拉第光谱测试到的电子自旋相干弛豫寿命的精度.法拉第光谱测试结果中丢失了电子复合动力学的独立信息,而只给出了自旋相干和电子复合动力学的组合

效应结果^[5,6].要获得纯的自旋相干寿命,需要扣除复合效应的影响,这就需要知道电子的复合寿命.目前报道的做法是利用线偏振抽运-探测光谱获得电子复合寿命^[7].然而,这就涉及到一个基本问题:电子自旋极化和非极化时,其复合寿命是否相同?如果不同,那么,依据线偏振抽运-探测光谱获得电子的复合寿命,从法拉第光谱信号中反演求解电子的纯自旋相干寿命的做法就存在问题,因为法拉第光谱信号中所涉及电子复合寿命是电子自旋极化时的复合寿命.已有实验迹象表明自旋极化和非极化时的电子复合寿命可能是不同的. Beschoten 等人^[8]在 n-GaN 中观察到,时间分辨法拉第光谱信号的持续时间比时间分辨线偏振抽运-探测饱和和透射信号的持续时间长得多.他们没有对这一现象给出合理解释.本文认为此结果正是显示出了在 n-GaN 中,自旋极化电子的复合寿命比自旋平衡电子的复合寿命长得多.否则, Beschoten 等人的实验结果难于解释.因而,从实验上深入研究自旋极化是否对电子复合动力学有影响,既是加深对半导体自旋电子学物理基础认识的需要,也是保证时间分辨法拉第光谱测量到的电子自旋退相干时间的可靠性的需要.本文正是对这一问题展开了深入研究.利用时间分辨圆偏振光和线偏振光饱和透射抽运-探测光谱技术,在

* 国家自然科学基金(批准号:60490295,60678009,10674184)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

9.6 K 低温下,研究了本征 GaAs 中电子自旋相干弛豫和载流子复合动力学过程及其随电子过超能量的演化.发现电子自旋极化与否确实对电子的复合动力学具有不同的影响,并且这种影响随电子过超能量变化而不同.

2. 实验及结果讨论

厚度为 $0.5 \mu\text{m}$ 的 GaAs 薄膜样品由分子束外延 (MBE) 沿 (001) 方向生长,无应力分子吸附在宝石片衬底上,并置于液氮闭路循环制冷低温光学装置的冷头上,温度设置为 9.6 K. 外加磁场由钕铁硼 (NdFeB) 永磁体产生,磁场强度为 1.3 T,与样品表面平行,并垂直于抽运-探测光平面.自锁模钛宝石激光器输出的激光脉宽约为 100 fs,重复率为 82 MHz 的激光脉冲列通过一个标准的抽运-探测装置^[9,10],输出的抽运/探测光强比为 3:1 的平行抽运和探测光束通过一个消色差宽带 $1/4$ 波片后变为同旋向圆偏振光,由一个透镜聚焦于样品上的同一点上.透过样品的圆偏振探测光的强度变化由光电管转换为电流,并由锁相放大器检测.锁模激光的波长可在 750—850 nm 的范围调谐,实验现场测试样品在每个波长的吸收率,并控制抽运光功率,使得每个实验测试波长下,抽运光激发的载流子浓度均约为 $2.65 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ^[11].

图 1 中实线为在 9 个不同光子能量下获得的右旋圆偏振光抽运-探测的归一化饱和和透射强度变化对时间的延迟曲线.相同条件下对应光子能量的线偏振光抽运-探测的饱和和透射强度变化对时间延迟曲线也被测量,乘以相同光子能量下右旋圆偏振光抽运-探测的饱和和透射强度变化的归一化因子后,结果如图 1 中的虚线所示.实线所示的振荡量子拍起源于电子自旋的拉莫尔进动^[3,9].当重整化效应可以忽略时,同旋向圆偏振光抽运-探测饱和和透射量子拍的时间演化可以由如下模型描述^[3]:

$$\frac{\Delta T}{T} = C \left[1 + \frac{1}{2} P \cos(\omega t) e^{-2t/T_2^*} \right] e^{-t/T_1}, \quad (1)$$

式中 C 为归一化系数, P 为电子自旋的初始极化度, ω 为电子自旋绕磁场的拉莫尔进动圆频率, T_2^* 和 T_1 分别为电子自旋相干寿命和电子布居复合寿命.方括号中第一项描述自旋极化电子布居的复合过程,第二项描述自旋进动感应的量子拍振荡.显然,量子拍是围绕复合衰减对称振荡的,即自旋极化电子的复合衰减通过量子拍振荡信号的中心.

图 1 中量子拍的特征随光子能量演化,如量子拍的相位在 1.558 eV 以上时出现反相 180° ; 延迟零点处的透射峰随光子能量增加而变得明显,导致峰后的饱和透射在 1.558 eV 以后变为吸收增强等.这些特征在文献 [11] 中已给出了解释.量子拍的相位反相起源于自旋不平衡布居引起的带填充效应和自旋进动^[11],而后两个特征则是由于抽运光注入的非平衡载流子的光谱烧孔效应、热化效应以及带隙重整化效应引起的.

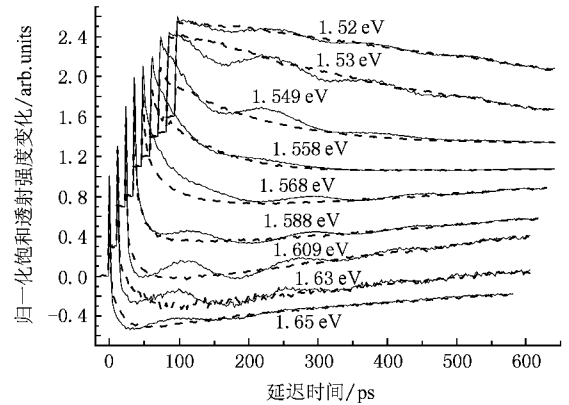


图 1 归一化饱和和透射强度变化(实线为圆偏振光抽运-探测得到的饱和透射量子拍,虚线为线偏振光抽运-探测时的饱和透射强度变化.除 1.65 eV 外,其他曲线的时间零点和零基线均被漂移. $T=9.6 \text{ K}$)

比较图 1 中的实线与虚线可以发现在量子拍振荡明显区域,虚线并不总是通过量子拍曲线的中心,但在量子拍振幅趋于零时,两者趋于重合.如图 1 中 500 ps 以后,实线与虚线趋于重合,因为此时自旋已退相干.在带底附近(1.52 eV)时,虚线通过量子拍的中心,即量子拍围绕虚线上下对称振荡,表明此时圆偏振光和线偏振光测量获得的电子复合寿命相等.然而,随光子能量增加,虚线开始偏离量子拍中心上移,如 1.53 eV 所示,此时圆偏振光测量到的电子复合寿命大于线偏振光测量到的复合寿命.当光子能量增加到 1.549 eV,虚线又回到量子拍的中心略偏下处,此时圆偏振光测量到的电子复合寿命小于线偏振光测量到的复合寿命.然后,随光子能量增加,虚线偏离量子拍中心下移量也增大,直至 1.568 eV 处达最大,之后,随光子能量增加,虚线又逐渐向量子拍中心回移,直至 1.65 eV 时,虚线回到量子拍中心略偏下处,光子能量大于 1.558 eV 时圆偏振光测量到的电子复合寿命大于线偏振光测量到的复合寿命.可见量子拍振幅越大,虚线与量子拍中

心的偏离量也越大. 这充分显示了自旋极化对电子复合动力学的重要影响, 因为量子拍振幅的大小正比于电子自旋极化度. 下面将通过模拟计算对于上述实验现象给出一个合理解释.

3. 模拟计算

对于本征 GaAs, 其本征吸收系数为^[12,13]

$$\alpha_0(E) = \frac{C_{lh}(E)}{E} \sqrt{E - E_g} + \frac{C_{hh}(E)}{E} \sqrt{E - E_g}, \quad (2)$$

式中 $C_{ih}(E) = \frac{e^2(2\mu_i)^{3/2}}{2\pi\epsilon_0 c \gamma m_0^2 \hbar^2} |p_{cv}^2(E)|_i$, 其中 $i = 1$ 或 h , 分别表示轻或重空穴. $\mu_i = m_e m_{ih} / (m_e + m_{ih})$ 为电子和空穴的折合质量, m_e, m_{lh} 和 m_{hh} 分别为电子、轻空穴和重空穴的有效质量, m_0 为自由电子质量, c 为光速, E_g 为材料的带隙, $|p_{cv}^2(E)|_i$ 为价带与导带之间的跃迁矩阵元平方的平均值^[13].

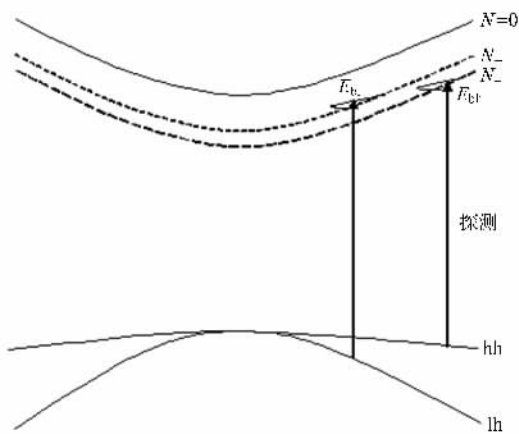


图2 GaAs的本征能带结构和考虑带隙重整化效应的能带结构 (E_{lh} 和 E_{hl} 分别为探测光从重、轻空穴价带探测到的两个能量分裂的导带电子能级)

图2中实线为 GaAs 的本征带结构, 虚线表示右旋圆偏振抽运光 ($\sigma = 1$) 激发后, 导带注入了自旋不平衡布居电子后的导带结构. 由于自旋向下态 ($| -1/2 \rangle$) 中被注入的电子数 (N_-) 倍于自旋向上态 ($| 1/2 \rangle$) 中的电子数 (N_+), 即 $N_- : N_+ = 3 : 1$, 同时重整化效应引起带隙收缩量近似正比于 $N_{\pm}^{1/3}$ ^[12-14]. 所以 $| -1/2 \rangle$ 自旋导带的带隙重整化效应强于 $| 1/2 \rangle$ 自旋导带, $| -1/2 \rangle$ 自旋导带位于 $| 1/2 \rangle$ 自旋导带之下. 考虑自旋极化不平衡载流子布居及其感应的不平衡带隙重整化效应后, 左、右旋

圆偏振光的吸收不同 (2) 式应该修改为^[3,13]

$$\begin{aligned} & \alpha^{\pm}(E, N, T_0, T) \\ &= \frac{C_{lh}(E, T_0)}{E} \sqrt{E - (E_g(T_0) + \Delta E_g(N_{\pm}))} \\ & \times \left(1 - f_v \left(E_{al}, \frac{N}{4}, T_0 \right) - f_c(E_{hl}, N_{\pm}, T_0, T) \right), \\ & + \frac{C_{hh}(E, T_0)}{E} \sqrt{E - (E_g(T_0) + \Delta E_g(N_{\mp}))} \\ & \times \left(1 - f_v \left(E_{ah}, \frac{3N}{4}, T_0 \right) - f_c(E_{hh}, N_{\mp}, T_0, T) \right), \quad (3) \end{aligned}$$

式中 $\alpha^+(E, N, T_0, T)$ 和 $\alpha^-(E, N, T_0, T)$ 分别表示右旋和左旋圆偏振光探测时的吸收系数. N 为总的注入载流子浓度, T_0 为晶格温度, T 为电子温度, E_{al} 和 E_{ah} 为价带中被探测的轻和重空穴态的过超能量, E_{hl} 和 E_{hh} 为导带中被探测的电子态的过超能量, f_v 和 f_c 分别为价带和导带的费米分布函数, $\Delta E_g(N_{\pm})$ 为带隙变化量, 与注入的载流子浓度 N_{\pm} 有关^[13,14], 即

$$\begin{aligned} \Delta E_g(N_{\pm}) &= - \left(\frac{e}{2\pi\epsilon_0\epsilon_s} \right) \left(\frac{6N_{\pm}}{\pi} \right)^{1/3} \\ & \times [1 - \exp(-2N_{\pm}/N_{critical})], \quad (4) \end{aligned}$$

式中 ϵ_0 和 ϵ_s 分别为真空介电常数和相对介电常数, e 为电子电荷量, $N_{critical}$ 为发生带隙重整化效应的最低电子浓度. 对于 GaAs, $N_{critical} = 2.7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

图3为基于(3)(4)式计算的透射谱相对变化. $(\Delta T/T)^+$ ($\approx -\Delta\alpha^+ L$, L 为样品厚度) 标注的曲线为计算的同旋向圆偏振光抽运-探测的透射谱相对

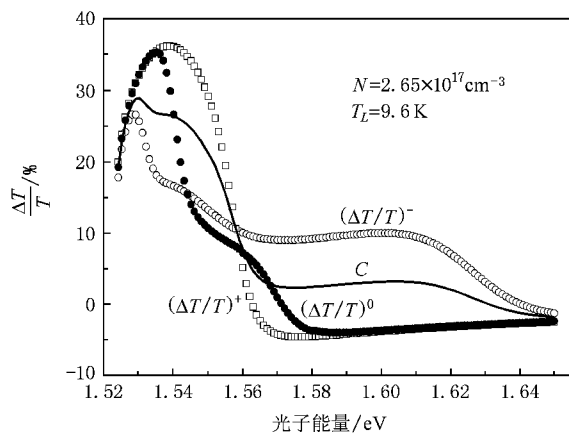


图3 计算的饱和透射相对变化光谱 ($(\Delta T/T)^+$ 标识的空心方形点线和 $(\Delta T/T)^-$ 标识的空心圆点线分别表示自旋向下电子数占优和自旋向上电子数占优时右旋圆偏振光探测饱和和透射谱, C 标识的实线为二者之平均 ($(\Delta T/T)^0$ 标识的实心圆点线为线偏振光抽运-探测时饱和和透射谱)

变化,而 $(\Delta T/T)^-$ 标注的曲线表示由于自旋的拉莫尔进动, $|1/2\rangle$ 和 $|-1/2\rangle$ 自旋导带交换电子布居后,计算的同旋向圆偏振光抽运-探测透射谱相对变化 $(\Delta T/T)^+$ 标注的曲线表示计算的线偏振光抽运-探测的透射谱相对变化。 C 标注的曲线表示振荡量子拍中心强度,定义为 $C = ((\Delta T/T)^+ + (\Delta T/T)^-)/2$ 。计算中晶格温度取实验设置的 9.6 K,抽运光激发的载流子浓度估计约为 $2.65 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$,假设热化电子温度随激发光子能量近似线性地从 11.6 K 增大至 25.6 K^[11,15]。计算结果与实验符合较好。探测光子能量大于 1.559 eV 时 $(\Delta T/T)^+ < (\Delta T/T)^-$,因而量子拍相位改变 180°。探测光子能量大于 1.562 eV 时开始出现吸收增强;探测光子能量小于 1.528 eV 时 $C \approx (\Delta T/T)^+$,与图 1 中 1.52 eV 时线偏振光抽运-探测结果通过量子拍中心一致。光子能量在 1.528—1.54 eV 范围时 $C < (\Delta T/T)^+$,与图 1 中 1.53 eV 时线偏振光抽运-探测结果在量子拍的中心偏上一致。光子能量在 1.54—1.56 eV 和 1.567—1.652 eV 范围时 $C > (\Delta T/T)^+$,与图 1 中 1.549, 1.558, 1.588, 1.609, 1.63 和 1.65 eV 时线偏振抽运-探测结果从量子拍中心下方通过一致。但是,光子能量在 1.56—1.57 eV 范围时,计算结果显示 $C \approx (\Delta T/T)^+$ 表明线偏振探测结果应该从量子拍中心附近通过,与图 1 中 1.568 eV 时线偏振探测结果偏离量子拍中心下移最大不一致。这可能与此处所取电子温度与实际值偏离较大有关。但在 1.52—

1.65 eV 整个范围内,理论计算与实验结果总体上符合较好。因此,理论计算和实验结果均表明电子自旋极化或不平衡不仅对电子自旋相干动力学有明显的影晌^[4,5],而且对电子复合动力学也具有明显的影晌。

4. 结 论

圆偏振光和线偏振光抽运-探测透射光谱实验揭示电子的自旋极化对电子复合动力学具有显著影晌。在带底附近时,两者测试到的电子复合寿命一致。随着探测光子能量增加,线偏振测试结果会逐渐偏离量子拍中心上移,直到光子能量增加到约 1.54 eV 时,又回到量子拍中心。因此,在高于带底与 1.54 eV 范围,线偏振测试的复合寿命应该小于量子拍测试的复合寿命。当光子能量继续增加,线偏振测试结果会偏离量子拍中心下移,直到 1.558 eV 时偏离达到最大,然后继续增加光子能量,偏离又逐渐减小,直到 1.65 eV 时又回到接近量子拍中心,但仍略偏下。理论计算与实验结果符合较好。我们的结果对提高法拉第光谱实验测试精度具有重要指导意义,并且表明从时间分辨法拉第光谱信号反演求解自旋相干弛豫寿命时,应该使用圆偏振光饱和和吸收或透射光谱测试的电子复合寿命,而目前使用线偏振光测试的电子复合寿命去反演求解法拉第信号、获取自旋相干寿命的方法并不可靠。

- [1] Datta S, Das B 1990 *Appl. Phys. Lett.* **56** 665
 [2] Loss D, DiVincenzo D P 1998 *Phys. Rev. A* **57** 120
 [3] 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
 [4] Weng M Q, Wu M W 2003 *Phys. Rev. B* **68** 075312
 [5] Stich D, Zhou J, Korn T, Schulz R, Schuh D, Wegscheider W, Wu M W, Schüller C 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 176401
 [6] Kikkawa J M, Awschalom D D 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4313
 [7] Robb J L, Chen Y, Timmons A, Hall K C, Shechkin O B, Deppe D G 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 153118
 [8] Beschoten B, Halperin E J, Young D K, Poggio M, Grimaldi J E, Keller S, DenBaars S P 2001 *Phys. Rev. B* **63** 121202(R)
 [9] Xu H H, Jiao Z X, Liu X D, Lei L, Wen J H, Wang H, Lin W Z, Lai T S 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2618 (in Chinese) 徐海红、焦

中兴、刘晓东、雷亮、文锦辉、王惠、林位株、赖天树 2006 物理学报 **55** 2618]

- [10] 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]
 [11] Lai T S, Teng L H, Jiao Z X, Xu H H, Lei L, Wen J H, Lin W Z 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 062110
 [12] Bennet B R, Soref R A, Del Alamo J A 1990 *IEEE J. Quantum Electron* **26** 113
 [13] Prabhu S S, Vengurlekar A S 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 7803
 [14] Nemes P, Kerachian Y, van Driel H M, Smirl A L 2005 *Phys. Rev. B* **72** 245202
 [15] Xu Z Y, Tang C L 1984 *Appl. Phys. Lett.* **44** 692

Effect of spin polarization on electron recombination dynamics in bulk intrinsic GaAs^{*}

Teng Li-Hua Yu Hua-Liang Huang Zhi-Ling Wen Jin-Hui Lin Wei-Zhu Lai Tian-Shu[†]

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

(Received 8 January 2008 ; revised manuscript received 22 February 2008)

Abstract

Time-resolved circularly polarized and linearly polarized pump-probe spectroscopies are used to study the recombination dynamics of spin-polarized and spin-nonpolarized electrons as well as its evolution with photon energy for an intrinsic GaAs at 9.6 K. It is found that the spin polarization has a significant influence on the electron recombination dynamics. The spectroscopic measurements give the same recombination lifetime only when measured near the bottom of the conduction band , but different recombination lifetimes were measured in higher excess-energy states. It is pointed out that the recombination lifetime measured by circularly polarized pump-probe spectroscopy , rather than that measured by linearly-polarized pump-probe spectroscopy , should be used to solve for the lifetime of electron-spin coherence from time-resolved Faraday spectroscopic data. The theoretical calculation agrees well with the experimental results.

Keywords : circularly polarized pump-probe spectroscopy , spin quantum beat , spin polarization , GaAs

PACC : 7847 , 6740F , 7730 , 7280E

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60490295 , 60678009 , 10674184) and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20050558030).

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