

利用飞秒双光子光电子发射研究 GaAs(100) 的自旋动力学过程^{*}

郭立俊^{1,2)†} Jan-Peter Wüstenberg¹⁾ Andreyev Oleksiy¹⁾ Michael Bauer¹⁾ Martin Aeschlimann¹⁾

¹⁾ 凯泽斯劳滕大学物理系, 凯泽斯劳滕 D-67663 (德国)

²⁾ 河南大学物理与信息光电子学院, 开封 475001)

(2004 年 12 月 10 日收到, 2005 年 4 月 27 日收到修改稿)

超短激光技术的发展为研究材料中的超快光动力学过程提供了重要的实验手段,也使得人们能够更为深入地研究电子的自旋动力学行为. GaAs(100) 表面由于费米钉扎而会导致能带弯曲,位于该区域的电子及其自旋特性将会明显不同于体相材料中的情况. 利用时间分辨和自旋分辨的双光子光电子发射技术研究了 p 型掺杂 GaAs(100) 表面的电子极化动力学过程. 结果表明,由费米钉扎而引起的能带弯曲明显影响电子的自旋弛豫过程,从实验上观察到了 GaAs(100) 表面能带弯曲区域的电子自旋翻转时间存在近 2 个量级的差异(从几纳秒到几十皮秒),基于电子-自旋交换相互作用的 BAP 机理在自旋弛豫过程中起着主导作用.

关键词: 光物理, 自旋极化, 双光子光电子发射, 砷化镓

PACC: 4280W, 6114R, 7525

1. 引 言

基于电荷控制的半导体技术已经得到了快速的发展,并对人类的生活产生极为重要的影响,但目前却遇到了时间或速度的极限问题. 同时,电子的自旋特性很久以来却并没有得到人们的足够重视,而在传统半导体电子学的基础上考虑增加一个自旋自由度无疑将会对传统电子器件在数据处理速度、降低功耗、增加集成度等方面有重大的改善. 而这些新型自旋电子器件的应用却必须考虑到与现有半导体器件的结合及兼容,仍有很多理论和实验上的问题需要解决^[1-3]. 近年来,半导体材料中的自旋动力学过程的研究引起了人们较多的兴趣^[4],尽管人们提出了几种不同的物理机理来解释不同实验及不同材料中所观察到的自旋弛豫过程,但在有关自旋翻转、退相等超快过程的物理机理方面仍未形成统一的认识,因此,对半导体材料中自旋动力学过程的研究无论是从基础理论还是从未来自旋器件的应用角度来讲,都具有重要的意义,而超短脉冲激光技术的发展则为人们研究或观察半导体中自旋弛豫过程提供了

重要的实验手段^[5].

砷化镓(GaAs)是一个传统的直接带隙的 III-V 族半导体材料,体相 GaAs 材料中的光诱导自旋极化及其弛豫过程也已经得到了较为广泛的研究^[4,6]. 对于掺杂的 GaAs(100) 晶体表面,由费米钉扎而引起的能带弯曲会明显影响载流子及自旋动力学过程. 由于自旋动力学过程与诸如材料种类、载流子类型和浓度、动量弛豫时间以及温度等因素有关,人们利用不同的实验技术在诸如体相、量子阱、异质结等 GaAs 基半导体材料中观察到了不同的自旋弛豫时间,也提出了不同的物理机理^[6,7]. 本文利用时间分辨双光子光发射(TR-2PPE)技术研究了在 p 型掺杂 GaAs(100) 能带弯曲区域电子的超快自旋极化弛豫过程.

2. 实验方法及材料

TR-2PPE 技术具有很高的表面灵敏度和较高的能量选择性,非常适合于研究载流子在表面界面的动力学行为. 其基本原理也是基于通常的抽运-探测技术,如图 1 所示,一个光子将处在费米能级以下的

^{*} 河南省高校青年骨干教师基金和河南大学自然科学基金(批准号: XK03ZDWL154)资助的课题.

[†] E-mail: lijunguo6507@yahoo.com.cn

电子激发到未占居态,如果该激发态的寿命不是很短的话,另一个光子则可将该激发态电子激发到真空能级以上,由能量分析器来探测这些不同能量的电子则可以获知有关激发态(中间态)的信息,该技术已经成为研究表面-界面动力学过程的重要工具.

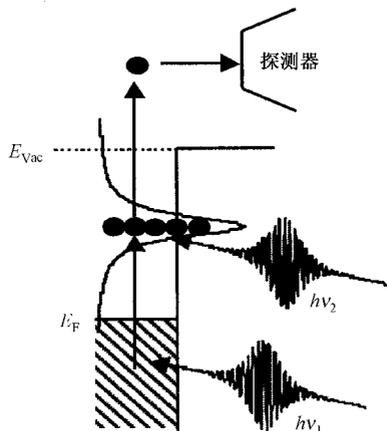


图1 时间分辨双光子光发射的基本原理图

实验中所用激发光源为由氩离子激光器(美国 Coherent 公司)抽运的飞秒 Ti:Sapphire 激光器(美国 Spectral Physics 公司),激光脉宽 20fs,中心波长 790nm,重复频率 82MHz.实验光路见文献[8],基频光(红光)经过 BBO 倍频晶体得到中心波长为 395nm 的蓝光,剩余的基频光(红光)作为抽运光,倍频光(蓝光)为探测光,通过光学延迟线调节抽运光和探测光的相对延时.四分之一波片用来调节红光的左旋或右旋偏振,GVD 用来补偿系统中的群速色散,抽运光和探测光平行重叠地引入到超高真空室.

2.1. UHV 系统

所有测试都是在超高真空室中进行,测量过程中,真空度保持在 10^{-5} mPa.利用钨晶体可将自旋向上和自旋向下的光电子区分开来^[9],为了增加到分析器的电子产额,在样品和分析器之间加有 -4V 的偏压.检测系统可以进行电子能谱、时间分辨电子能谱、自旋极化电子能谱和时间分辨自旋极化电子能谱等方面的测试.

实验中,自旋极化度 P 可由 $P = 1/B * ((n^{\uparrow} - n^{\downarrow}) / (n^{\uparrow} + n^{\downarrow}))$ 确定,其中 B 为 Sherman 函数,在不考虑检测系统对称性的情况下,其值约为 0.25; n^{\uparrow} , n^{\downarrow} 分别为自旋向上和向下检测通道的电子计数率,实际测量中,通过改变抽运光的左/右旋偏振来消除检测系统对称性对自旋极化度的影响.

2.2. 样品的处理

本文所用材料为 p 型重掺杂(100)取向的 GaAs 晶体,掺杂浓度为 $N_A = 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 首先用丙酮对 GaAs 晶体表面进行脱脂处理,然后用酒精冲洗,再用去离子水清洗,以保证对其表面能够进行均匀的蚀刻,对(100)面的蚀刻过程参照文献[10]进行.表面蚀刻并用去离子水冲洗之后,迅速将样品移到氮气环境的腔体并对其抽真空处理;在真空度达到 10^{-3} mPa 以下,将样品送入超高真空室,并对其进行处理加热处理,温度约在 500℃左右,同时利用质谱仪监测真空室中原子成分的变化,以避免样品表面砷的释出.

3. 结果与讨论

为了获得由红光抽运、蓝光探测情况下的 2PPE 信号,在测试之前要在样品表面沉积一定量的铯,以减小材料的功函数;光激发产生的电子在内电场的驱动下向表面移动,同时空穴则向体内迁移,从而形成了半导体/金属界面处的 Schottky 势垒.对于重掺杂的 p 型 GaAs 来说,由于费米钉扎而导致的能带弯曲可达 0.6eV,从而显著影响位于该区域的激发载流子的能量及自旋弛豫过程.

图 2 为 GaAs(100) 的能带结构、电子跃迁及表面弯曲情况下的示意图,室温下其带隙为 1.43eV,其价带存在自旋-轨道劈裂($\Delta = 0.34\text{eV}$).根据跃迁选择定则和激发光的光子能量,在抽运光(1.55 eV)激发的情况下,只存在两种可能的电子跃迁($\Delta m_j = \pm 1$),分别可以利用左旋/右旋偏振光来激发,左/右旋偏振光激发所各自对应的两种跃迁概率也不相同,从而产生了具有不同自旋取向(自旋向上或自旋向下)的光电子.这些电子将在内电场的作用下快速移动到带弯曲表面,如图 2 所示,这一过程通常发生在几百飞秒时间^[11],相对于抽运光有一定时间延迟的探测光(3.1eV)则将位于该区域的电子激发到真空能级以上,通过能量及时间分辨电子能谱技术则可以研究载流子的超快能量及自旋弛豫过程.

在红-蓝抽运-探测配置情况下,左/右圆偏振的红光作为抽运光激发产生的具有自旋极化的光电子,而由线偏振的蓝光对位于能带弯曲表面的电子自旋动力学进行探测,该探测光对电子的自旋极化

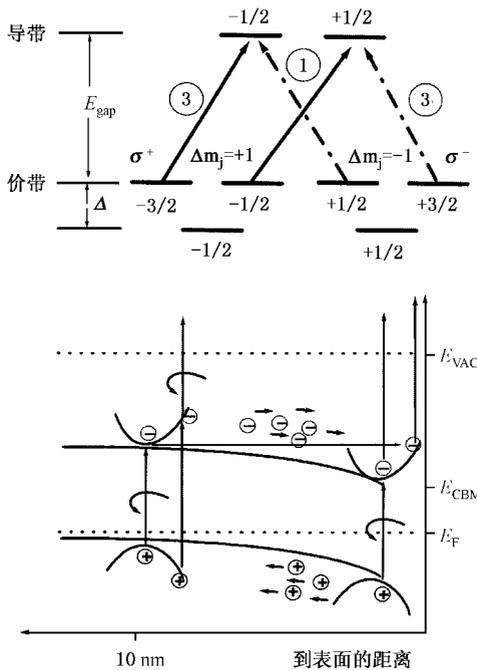


图2 GaAs(100)的能带结构及电子跃迁示意图

没有贡献.在时间分辨自旋极化光电子能谱的测量中,则存在四种可能的多光子过程:1)红-蓝双光子跃迁:材料首先吸收能量为1.55eV的红光,位于导带的光电子被线偏振的蓝光激发到真空能级以上,其自旋极化特性表现为一定的时间依赖关系.2)红光的三光子过程:该过程同样对电子的自旋极化有贡献,但这是一个单色过程.为了减小该过程对自旋极化信号的贡献,实验中通过控制红光的功率密度将只有红光情况下的电子计数率调为接近于零.3)蓝-蓝双光子过程:该过程也会表现为一个与时间相关的背景信号,相应电子的能量要明显高于其他情况,并不携带自旋极化信息.为了提高信噪比,实验中也只将只有蓝光情况下的电子计数率调节到接近于零.4)蓝-红双光子跃迁过程:尽管由该过程产生的电子能量与红-蓝双光子过程产生的电子能量基本相同,但这部分电子也不会对自旋极化有贡献.在红-蓝光时间上部分重叠的情况下,由红光引起的电子自旋极化将会受到蓝-红双光子过程的影响或抑制,毕竟自旋极化是基于自旋相反电子布居数的相对变化,因此在时间零点附近,自旋极化会明显低于红-蓝双光子过程.

图3为GaAs(100)的时间分辨2PPE谱,正(负)延时分别对应于红-蓝(蓝-红)跃迁情况下的自旋极化(红色)以及激光脉冲的交叉相关曲线(黑色).

从图中可以看出,在蓝-红侧,处于较高激发态的电子具有较快的弛豫过程,而位于红-蓝侧的低激发态(能带弯曲区)的电子则有较长的寿命.而对于自旋动力学曲线,则可以分为A,B,C三个区域,A区主要来自于具有一定自旋极化特性的三光子红光过程和无自旋极化特性的蓝-红双光子过程的贡献,由于实验中将以上两种情况下的电子计数率调得接近于零,图中相应的自旋极化信号具有较差的信噪比.B区为重叠区,红-蓝和蓝-红双光子过程都对电子计数率有贡献,但蓝光和红光对样品的穿透深度不同,由红光激发的光电子迁移到表面需要一定的时间,也就是说在一定的正延时情况下,信号仍主要来自于蓝-红跃迁,从而自旋极化信号受到了很大程度的抑制.C区,在200fs之后,信号则主要来自于红-蓝双光子过程,从而表现出较明显的自旋极化特性以及较长的弛豫时间.

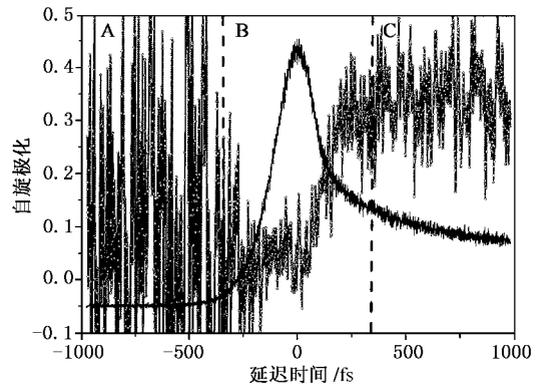


图3 GaAs(100)时间和自旋分辨的双光子光发射曲线

图4给出了导带底(conduction band minimum, CBM)和导带底以上0.2eV和0.4eV处电子的时间分辨自旋极化曲线,可以看出电子的自旋极化度在几百飞秒的时间内达到最大,然后经历一个较慢的衰减过程.位于导带底的电子自旋极化弛豫时间约在1.5ns,而能量在导带底以上0.2eV和0.4eV的电子自旋极化弛豫时间分别为800ps和140ps.图4也同时示出了能带弯曲表面不同能量处电子自旋极化弛豫时间曲线,从图中可以看出,位于带弯曲表面能量最低处电子的自旋弛豫要比在块体的情况慢近2个数量级.

我们知道,通过圆偏振光激发GaAs可以产生具有不同自旋取向的光电子,也就是可以观察到材料中的自旋极化现象,而导致这种自旋极化弛豫的物理过程则有电子-声子散射(光学声子、声学声子、谷间散射)、载流子-载流子散射(电子-电子、电子

- 空穴)以及电子-杂质散射等等.自旋寿命包括由于与周围环境发生相互作用而引起的自旋退相 T_2 、由于 g 因子不同引起的退相干以及纵向自旋弛豫时

间 T_1 , 而 T_1 通常也被称为自旋翻转时间. T_2 通常表现为样品温度及所加电磁场的函数, g 因子的变化则源于塞曼劈裂. 因此, 本文采用时间分辨 2PPE 技

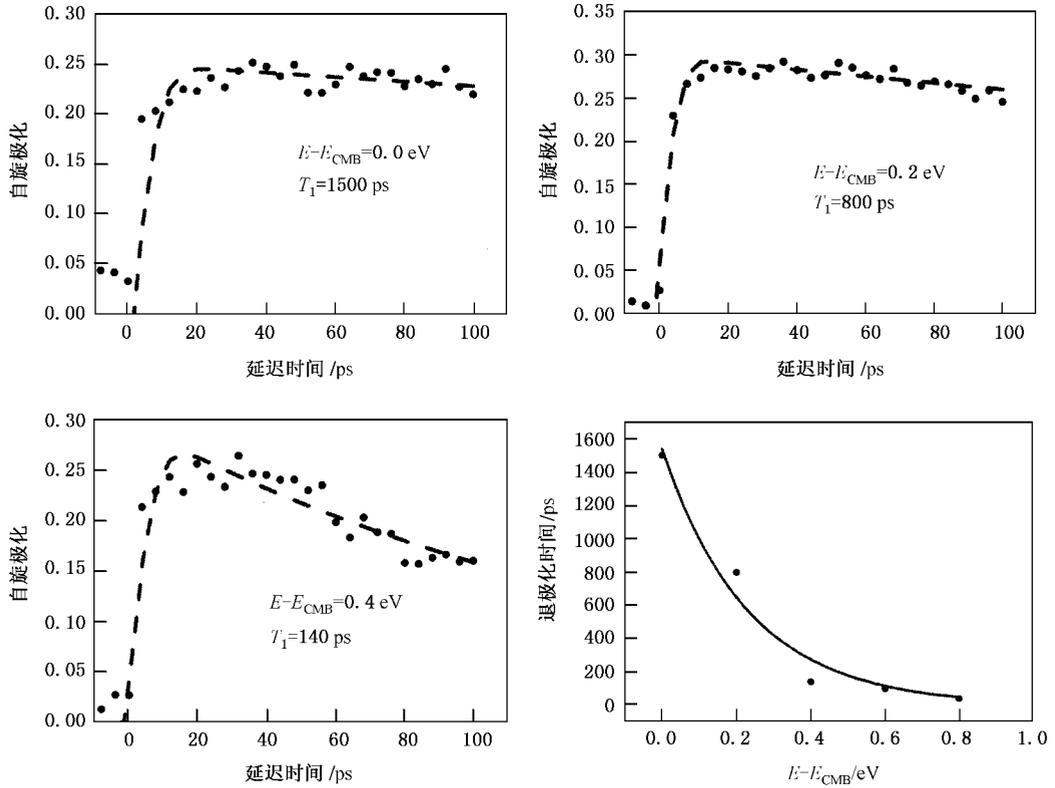


图 4 能带弯曲表面不同能量的电子自旋极化弛豫及退极化时间曲线

术在室温下所得到是自旋翻转时间 T_1 , 由磁场或 g 因子变化所引起的退相或退相干过程在本实验中并不重要.

对于不同材料和不同实验中所观察到的自旋弛豫过程, 人们先后提出了 EY (Elliott-Yafet) 机理^[12]、DR (D'yakonov-Perel) 机理^[13]、BAP (Bir-Aronov-Pikus) 机理等不同的物理机理^[6,7]. EY 机理主要描述的是由于电子导带波函数与自旋相反的价带波函数的混合, 从而导致导带电子和价带电子自旋取向的协同变化(比如被声子或杂质散射), 假设平均动量散射时间为 100fs 的情况, 相应的弛豫时间约为 $\tau_s \approx 10 \times (E_g/E)^2$ (ps), 其中 E_g 为带隙, E 为相对于导带底的能量, 考虑 GaAs 的 $E = 0.2$ eV 情况, 自旋翻转的时间约为 490 ps, 但这种机理主要适用低温下的情况, 同时在体相半导体材料中该机理的贡献也比较弱. 对于较高温度的情况, 通常用 DP 机理来描述 III-V 族半导体材料的自旋弛豫. 在本实验条件下, 抽运光红光的光子能量为 1.55 eV, GaAs(100) 的带

隙室温下为 1.42 eV, 价带的自旋劈裂为 0.34 eV, 而能量/时间分辨自旋极化实验中我们将蓝-蓝双光子过程光电子计数率控制为零, 因此可以排除 EY 机理的贡献.

DP 机理主要描述的是基于具有相同动量但自旋相反的导带电子的自旋劈裂, 通常与外加磁场(或内磁场)及与 III-V 族化合物的闪锌矿结构缺乏反对称性有关. 相应的弛豫时间 $\tau_s \approx 0.4 \times (E/eV)^{-3}$ (ps), 对于能量在 0.2eV 的体相材料, 其退相时间约为 50 ps^[14]. 近年来, 人们基于量子限制效应主要通过制备量子阱、量子线等材料来抑制这种退相过程, 室温下自旋弛豫时间甚至可以达到 2ns^[15]. 从我们的实验结果来看, 用这种机理来解释带弯曲表面较慢的自旋极化弛豫显然比较困难. 而 BAP 机理则主要描述的是由于电子-空穴散射过程而引起的自旋翻转过程, 相应的弛豫时间为 $1/\tau_s = N_h \sigma_s v_k$, N_h 为空穴浓度, v_k 为电子速度, σ_s 为自旋翻转截面. BAP 机理对低温下或重掺杂半导体体相材料中的自旋翻

转过程给出了较好的解释^[4,16].

以上三种物理机理在不同材料体系及不同温度情况下对自旋弛豫过程的贡献有所不同,这与诸如材料的种类、温度、动量弛豫时间、载流子的类型和浓度等因素有关.在未掺杂的 GaAs/AlGaAs(100)量子阱材料中,DP 机理被认为在较高温度下占主导地位,而在低温或重 p 型掺杂的量子阱结构材料中,BAP 机理所导致的自旋弛豫则明显加强.

对于体相 GaAs(100)材料,无论是直接在带弯曲表面激发产生的电子还是由体相内激发产生并扩散到表面的载流子,都会经历一些非弹性散射的能量弛豫过程,而能量弛豫时间明显快于自旋弛豫,但自旋翻转过程却与这些能量弛豫过程没有明显的依赖关系.当然,在体相 GaAs(100)能带弯曲表面的电子极化弛豫过程也涉及多种物理机理,由于载流子布居数的快速衰减,也为比较准确地确定自旋翻转时间带来了困难.结合我们的实验结果,对于深度 p 型掺杂的 GaAs 材料来讲,电子-空穴散射所引起的自旋翻转无疑将是最重要的自旋极化弛豫机理

(BAP 理论),而自旋退极化时间则会明显依赖于空穴浓度.考虑到 GaAs(100)表面的能带弯曲,光电子在内电场的驱动下向表面迁移的同时,空穴则向体内移动,从而形成了空穴浓度梯度,因此在表面附近能量位于导带底部的电子受到空穴散射的程度明显要低,基于 BAP 理论,电子自旋退极化的时间也明显要长,相反,能量位于导带底以上的电子自旋退极化(自旋翻转)过程要快得多.

4. 结 论

在 p 型重掺杂的 GaAs(100)表面,由费米钉扎而引起的能带弯曲明显影响了电子的能量及自旋弛豫过程,我们通过时间分辨双光子光电子发射和自旋分辨电子能谱技术从实验上观察到了 GaAs(100)表面能带弯曲区域的电子自旋极化弛豫过程,不同能量处的电子自旋翻转时间存在约 2 个量级的差别,基于电子-自旋交换相互作用的 BAP 机理在自旋极化弛豫过程中起主导作用.

- [1] Ohno H 1998 *Science* **281** 951
- [2] Wolf S A, Awschalom D D, Buhrman R A, Daughton J M, Von Molnar S, Roukes M L, Chtchelkanova A Y and Treger D M 2001 *Science* **294** 1488
- [3] Gregg J F, Petej I, Jouguelet E and Dennis C 2002 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **35** R121
- [4] Maialle M Z 1996 *Phys. Rev. B* **54** 1967
- [5] Yang H, Zhang T Q, Wang S F and Gong Q H 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1292 (in Chinese) [杨宏、张铁桥、王树峰、龚旗煌 2000 物理学报 **49** 1292]
- [6] Fishman G and Lampel G 1977 *Phys. Rev. B* **16** 820
- [7] Kikkawa J M and Awschalom D D 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4313
- [8] Bauer M and Aeschlimann M 2002 *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* **24** 225
- [9] Kirschner J and Feder R 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1008
- [10] Landolt-Bomstein 1982 *Numerical data and functional relationships in science and technology*, Vol. 17a d, Springer
- [11] Diol S J, Miller C C, Schmuttenmaer C A, Cao J, Gao Y, Mantell D A and Dwayne Miller R J 1997 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **30** 1427
- [12] Elliott R J 1954 *Phys. Rev.* **96** 266
- [13] D'yakonov, Perel V I 1971 *Sov. Phys. JETP* **33** 1053
- [14] Zerrouati K, Fabre F, Bacquet G, Bandet J and Frandon J 1988 *Phys. Rev. B* **37** 1334
- [15] Ohno Y, Terauchi R, Adachi T, Matsukura F and Ohno H 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 4196
- [16] Aronov A G, Pikus G E and Titkov A N 1983 *Sov. Phys. JETP* **57** 680

Spin dynamics of GaAs(100) by two-photon photoemission *

Guo Li-Jun^{1,2)} Jan-Peter Wüstenberg¹⁾ Andreyev Oleksiy¹⁾ Michael Bauer¹⁾ Martin Aeschlimann¹⁾

¹⁾ Department of Physics, University of Kaiserslautern, D-67663 Kaiserslautern, Germany)

(Department of Physics, Henan University, Kaifeng 475001, China)

(Received 10 December 2004 ; revised manuscript received 27 April 2005)

Abstract

On p-doped GaAs(100) surface, the band bending arising from Fermi-level pinning significantly affects the carrier and spin dynamics. In this paper, we report the dynamics of spin polarization of p-doped GaAs(100) by using the time-resolved and the energy-resolved two-photon photoemission techniques. By measuring the spin and energy relaxation of electrons emitted from the GaAs(100) surfaces, the dynamics of spin polarization were observed and the mechanism of spin relaxation was discussed as well. The experimental measurements together with the theoretical results indicate that the Bir-Aronov-Pikus (BAP) mechanism plays a dominant role for spin polarization decay, especially in band bending region of GaAs(100).

Keywords : photophysics, spin polarization, two photon photoemission, GaAs

PACC : 4280W, 6114R, 7525

* Project supported by the Foundation for Teachers by the Henan Province, and Natural Science Foundation of Henan University (Grant No. XK03ZDWL154).