

Спин-зависимая рекомбинация в твердых растворах GaAsN

В. К. Калевич¹⁾, Е. Л. Ивченко, М. М. Афанасьев, А. Ю. Ширяев, А. Ю. Егоров, В. М. Устинов, Б. Пал⁺,
Я. Масумото⁺

Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия

⁺Institute of Physics, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8571, Japan

Поступила в редакцию 8 августа 2005 г.

После переработки 29 августа 2005 г.

При комнатной температуре обнаружена спин-зависимая рекомбинация (СЗР) в твердых растворах GaAs_{1-x}N_x ($x = 2.1, 2.7, 3.4\%$), проявляющаяся в более чем трехкратном уменьшении интенсивности краевой фотолюминесценции (ФЛ) при изменении круговой поляризации возбуждающего света на линейную или включении поперечного магнитного поля ~ 300 гаусс. Межзонное поглощение циркулярно поляризованного света сопровождается поляризацией спинов электронов проводимости, которая достигает 35% с ростом накачки. Наблюдающиеся эффекты объяснены динамической поляризацией глубоких парамагнитных центров и спин-зависимым захватом электронов проводимости на эти центры. Из зависимости деполяризации краевой ФЛ в перпендикулярном магнитном поле (эффект Ханле) от интенсивности накачки найдено, что время спиновой релаксации электронов порядка 1 нс. Теоретически показано, что при наличии СЗР это время определяется медленной спиновой релаксацией локализованных электронов. Положительный знак g -фактора локализованных электронов экспериментально определен по направлению вращения их среднего спина в магнитном поле во всех трех исследованных кристаллах.

PACS: 71.20.Nr, 72.25.Fe, 78.55.Cr

Твердые растворы Ga(In)AsN, выращенные на подложке из GaAs, привлекают в последние годы повышенный интерес благодаря их необычным физическим свойствам и перспективам применения в приборах оптоэлектроники ближнего инфракрасного диапазона. Взаимодействие локализованных состояний азота с собственными состояниями электронов в зоне проводимости приводит к аномальному уменьшению ширины запрещенной зоны при малом (единицы процентов) содержании азота [1, 2]. Вследствие сложной зонной структуры понимание механизмов энергетической релаксации и рекомбинации в этих материалах становится важным как с точки зрения фундаментальной физики, так и разработки приборов на их основе. В настоящей работе в GaAsN обнаружена спин-зависимая рекомбинация (СЗР). Она наблюдается при комнатной температуре и проявляется в резком уменьшении интенсивности краевой фотолюминесценции (ФЛ) при изменении круговой поляризации возбуждающего света на линейную или включении перпендикулярного магнитного поля ~ 300 гаусс. Следствием СЗР являются зарегистрированные также при комнатной температуре гигантские спиновая поляризация (35%) и спиновая память (~ 1 нс) электронов проводимости при межзон-

ном поглощении циркулярно поляризованного света. Объектом исследования были азотсодержащие твердые растворы GaAsN, представляющие собой нелегированные пленки толщиной 0.1 мкм, выращенные методом молекулярно-пучковой эпитаксии на полуизолирующей (001) GaAs подложке между слоями GaAs [3]. В качестве источника мышьяка использовался арсин. После выращивания структуры отжигались 5 мин при 700 °С в камере роста в потоке мышьяка. Исследовано три образца с содержанием азота $x = 2.1, 2.7, 3.4\%$.

Спиновая поляризация электронов проводимости создавалась при межзонном поглощении циркулярно поляризованного света [4]. Ее величина определялась путем измерения степени циркулярной поляризации ФЛ $\rho = (I^+ - I^-)/(I^+ + I^-)$, где I^+ и I^- – интенсивности компонент ФЛ, поляризованных по правому и левому кругу. Высокочувствительный анализатор поляризации [5], включающий кварцевый модулятор поляризации и синхронизированный с ним двухканальный счетчик фотонов, а также фотоумножитель с фотокатодом из InGaAsP, использован для измерения ρ и интенсивности $I = I^+ + I^-$ в спектральном диапазоне до 1.4 мкм. ФЛ возбуждалась непрерывным перестраиваемым Ti:sapphire-лазером, излучение которого направлено вдоль нормали к образцу и регистрировалась “на отражение” вдоль оси роста струк-

¹⁾e-mail: kalevich@solid.ioffe.ru

туры. Измерения выполнены при 300 К. Основные экспериментальные результаты качественно одинаковы во всех исследованных образцах, поэтому ниже приведем данные для твердого раствора $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ с $x = 2.1\%$.

Спектральные зависимости интенсивности и круговой поляризации ФЛ, измеренные в $\text{GaAs}_{0.979}\text{N}_{0.021}$ при возбуждении циркулярно поляризованным (σ^+ или σ^-) светом достаточно большой интенсивности, приведены на рис. 1 (увеличение x в образцах с $x = 2.7$ и 3.4% сопровождается красным сдвигом спектров). Спектр ФЛ является наложением двух сильно перекрывающихся линий. Расстояние между этими линиями увеличивается с ростом x и достигает 50 мэВ при $x = 3.4\%$ [3]. При этом низкоэнергетичная линия ФЛ поляризована отрицательно (относительно поляризации возбуждающего луча), а высокоэнергетичная линия поляризована положительно. Наличие двух линий ФЛ и противоположные знаки их поляризации объяснены в наших предыдущих работах расщеплением подзон тяжелых и легких дырок [3, 6]. Действительно, меньшая постоянная кристаллической решетки GaAsN по сравнению с GaAs приводит к растяжению пленки GaAsN в плоскости интерфейса, что эквивалентно ее одноосному сжатию вдоль оси роста. Одноосная деформация сопровождается расщеплением подзон легких и тяжелых дырок, которое растет с увеличением x . Спектр поляризации ФЛ на рис.1 измерен при одновремен-

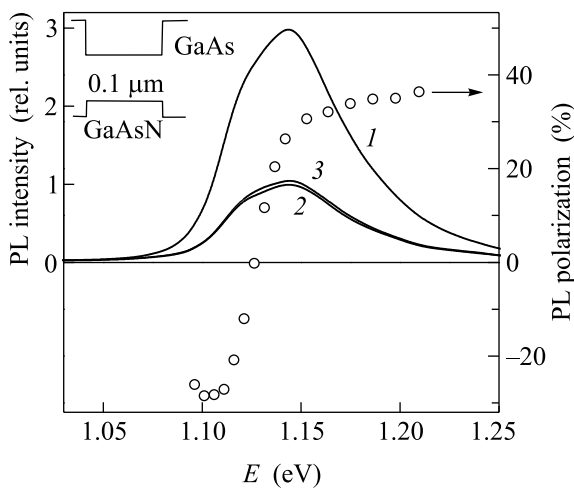


Рис.1. Спектры ФЛ при возбуждении циркулярно (кривые 1, 3) и линейно (кривая 2) поляризованным светом и спектр круговой поляризации люминесценции (кружки) в слое $\text{GaAs}_{0.979}\text{N}_{0.021}$. Спектр 3 получен в перпендикулярном магнитном поле 400 гаусс. Энергия возбуждения $h\nu_{\text{exc}} = 1.305$ эВ, интенсивность накачки $J = 150$ мВт, $T = 300$ К

ном возбуждении электронов из обеих валентных подзон. Чтобы исключить возбуждение электронов в слоях GaAs , играющих по отношению к GaAsN роль барьера, энергия возбуждающих квантов была меньше ширины запрещенной зоны GaAs . Поэтому отрицательный знак поляризации низкоэнергетичной линии ФЛ и положительный знак поляризации высокоэнергетичной линии ФЛ показывают, что эти линии обусловлены рекомбинацией электронов с легкими и тяжелыми дырками, соответственно.

Спектр 2 на рис.1 получен при возбуждении линейно поляризованным (π) светом. Из сравнения кривых 1 и 2 видно, что изменение поляризации возбуждающего света с круговой на линейную приводит к уменьшению интенсивности I , достигающему трех раз вблизи максимума ФЛ. К такому же уменьшению I приводит включение магнитного поля ~ 300 гаусс, перпендикулярного направлению возбуждения (т.е. лежащего в плоскости структуры) (кривая 3 на рис.1). Отметим, что в сравнении с такими изменениями изменение I , наблюдавшееся при замене σ^+ на σ^- накачку, является пренебрежимо малым.

Кривые деполяризации ФЛ $\rho(B)$, измеренные в $\text{GaAs}_{0.979}\text{N}_{0.021}$ в поперечном магнитном поле $\mathbf{B} \perp [001]$ вблизи максимума линии ФЛ с участием тяжелых дырок при разной интенсивности σ возбуждения, представлены на рис.2а. Эти зависимости аппроксимируются лоренцевскими кривыми (сплошные линии на рис.2а) вида

$$\rho(B) = \rho^* + \frac{\rho_0}{1 + (B/B_{1/2})^2}, \quad (1)$$

где ρ^* – постоянная составляющая ($\approx 5\%$), $B_{1/2}$ – полуширина кривой на полувывоте, ρ_0 – максимальное изменение ρ в магнитном поле. Значения $B_{1/2}$ и ρ_0 сильно зависят от интенсивности возбуждающего света J . Вместе с тем, как показали дополнительные измерения, при одинаковой интенсивности накачки ширины кривых $\rho(B)$ одинаковы для положительной (переход $c-hh$) и отрицательной (переход $c-lh$) поляризации ФЛ. Это подтверждает предположение, что поляризация дырок отсутствует вследствие их быстрой спиновой релаксации, и поляризация ФЛ обусловлена только поляризацией электронов.

Магнитопольные зависимости $I(B)$ интенсивности ФЛ приведены на рис.2б. Они также описываются лоренцевскими кривыми (сплошные кривые на рис.2б), причем их ширина совпадает с шириной зависимостей $\rho(B)$ при одинаковой интенсивности возбуждения.

Экспериментальные результаты, представленные на рис.1 и 2, можно объяснить в рамках модели СЗР,

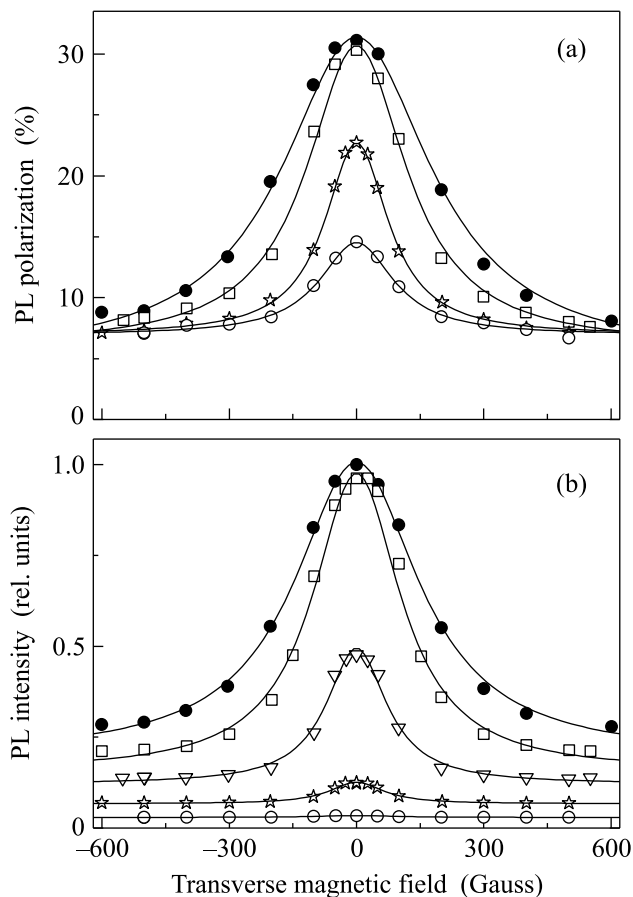


Рис.2. Зависимости степени круговой поляризации (а) и интенсивности (б) люминесценции в слое GaAs_{0.979}N_{0.021} от величины поперечного магнитного поля при разной интенсивности J возбуждающего циркулярно поляризованного света. $h\nu_{exc} = 1.311$ эВ, $h\nu_{det} = 1.159$ эВ, $T = 300$ К. J (мВт): \bullet – 240, \square – 150, ∇ – 100, \star – 50, \circ – 25. Сплошные линии – аппроксимация экспериментальных зависимостей лоренцевскими кривыми $y(B) = y^* + y_0(1 + B^2/B_{1/2}^2)^{-1}$

сформулированной Вайсбушем и Лампелем [7] применительно к твердым растворам Ga_{0.6}Al_{0.4}As и использованной в [8, 9] при анализе рекомбинационных процессов в GaAs и сверхрешетках GaAs/AlGaAs. Предполагается, что на каждом центре может находиться либо один электрон с нескомпенсированным спином $\pm 1/2$, либо два электрона в синглетном состоянии с нулевым суммарным спином. При нормальном возбуждении циркулярно поляризованным светом в отсутствие магнитного поля спины электронов поляризованы вдоль направления возбуждения (ось z). Введем обозначения n_{\pm} , N_{\pm} для концентрации свободных электронов и парамагнитных центров с проекцией электронного спина $\pm 1/2$, и $N_{\uparrow\downarrow}$ для концентрации центров с двумя электронами. В рассматриваемой модели СЗР вкладом зона-зонного

механизма рекомбинации пренебрегается, а скорости ухода свободных носителей через центры определяются выражениями $(dn_{\pm}/dt)_{rec} = -\gamma_e n_{\pm} N_{\mp}$ для электронов и $(dp/dt)_{rec} = -\gamma_h p N_{\uparrow\downarrow}$ для дырок, где p – концентрация дырок, которые считаются неполяризованными вне зависимости от поляризации возбуждающего света. Кроме рекомбинационных констант γ_e и γ_h , система характеризуется еще двумя параметрами: временами спиновой релаксации свободных (τ_s) и связанных (τ_{sc}) электронов, удовлетворяющими при комнатной температуре неравенству $\tau_s \ll \tau_{sc}$.

Для качественного объяснения поведения интенсивности и циркулярной поляризации ФЛ в зависимости от поляризации возбуждающего света и величины внешнего магнитного поля достаточно рассмотреть предельный случай слабой накачки, когда P_c мало [7, 9]:

$$I \propto 1 + aP_c P, \quad \rho = b(P_i + P_c). \quad (2)$$

Здесь $P = (n_+ - n_-)/(n_+ + n_-)$ и $P_c = (N_+ - N_-)/(N_+ + N_-)$ – степени спиновой поляризации свободных и связанных электронов, a и b – положительные коэффициенты, P_i – степень спиновой поляризации фотоэлектронов в момент рождения. Так как при линейно поляризованном возбуждении оптической ориентации электронных спинов не происходит, то отношение I_{circ}/I_{lin} интенсивностей ФЛ при циркулярной и линейной поляризации оптической накачки составляет $1 + aP_c P$, где значения P_c , P относятся к циркулярно поляризованному возбуждению. Заметим, что произведение $P_c P$ положительно и не зависит от знака циркулярной поляризации накачки. Поэтому $I_{circ} > I_{lin}$. В поперечном магнитном поле $\mathbf{B} \perp z$, таком что $|g_e| \mu_B B \tau_s / \hbar \ll 1$, а величина $|g_c| \mu_B B \tau_{sc} / \hbar$ произвольна (g_e, g_c – g -факторы свободного и связанного электронов, μ_B – магнетон Бора), можно пренебречь поворотом спина свободного электрона за счет ларморовой прецессии. В этом случае выражения (2) применимы и при $B \neq 0$, если под P_c понимать степень спиновой поляризации связанных электронов вдоль оси z : $P_c(B) = P_c(0)[1 + (\Omega_c T_{sc})^2]^{-1}$. Здесь $\Omega_c = g_c \mu_B B / \hbar$, $T_{sc}^{-1} = \tau_{sc}^{-1} + \tau_c^{-1}$, $\tau_c^{-1} = \gamma_h N_{\uparrow\downarrow} (p/N)$, так как деполаризация спинов связанных электронов возникает как за счет спиновой релаксации, определяемой временем τ_{sc} , так и за счет захвата дырок на центры с двумя электронами, определяемого временем τ_c . С ростом магнитного поля происходит деполаризация связанных электронов, вследствие чего интенсивность I_{circ} убывает до I_{lin} , а поляризация ρ – до $bP_i \equiv \rho^*$.

Для нахождения интенсивности и поляризации ФЛ при сильной накачке необходимо решить нели-

нейную систему уравнений баланса. Предварительные расчеты показывают, что рассматриваемая модель СЗР применима для объяснения экспериментальных данных, полученных во всем исследованном диапазоне значений J .

Покажем, что в рассматриваемой системе, несмотря на короткое время спиновой релаксации τ_s , имеется также длинное время эволюции спинов свободных электронов. С этой целью запишем уравнения для скоростей изменения электронной поляризации, которые следуют из уравнений баланса для n_{\pm}, N_{\pm} :

$$\frac{dP}{dt} = -\frac{P}{\tau_s} + \frac{P_c}{\tau_0}(1 - P^2) + \frac{G}{n}(P_i - P), \quad (3)$$

$$\frac{dP_c}{dt} = -\frac{P_c}{T_{sc}} + \frac{n}{N} \frac{1}{\tau_0} P(1 - P_c^2), \quad (4)$$

где $\tau_0^{-1} = \gamma_e N/2$. Второе слагаемое в правой части уравнения (3), связанное со СЗР, играет роль генерации спина. Действительно, временная кинетика $P(t)$ при выключении стационарного оптического возбуждения ($G = 0$) включает быстро и медленно затухающие составляющие: первая затухает со временем порядка τ_s , а вторую можно аппроксимировать как $P(t) \approx (\tau_s/\tau_0)P_c(t)$.

Близость максимальных значений ($\sim 35\%$) поляризации ФЛ на рис. 2а к предельной величине 50% свидетельствует о длительном сохранении спиновой памяти электронов проводимости. Вместе с тем, как мы выяснили выше, при наличии СЗР спиновая память нелинейно связанных подсистем спинов свободных и локализованных электронов определяется большим временем T_{sc} жизни спина локализованных электронов. Последнее легко определить с помощью эффекта Ханле, поскольку $B_{1/2} = \hbar/g_c\mu_B T_{sc}$. Время T_{sc} тем больше, чем меньше $B_{1/2}$. Определенное из рис. 2а наименьшее значение полуширины кривой Ханле равно $B_{1/2}^{\min} = (91 \pm 5)$ гаусс. Учитывая, что $\tau_{sc}^{-1} < T_{sc}^{-1}$, получаем оценку снизу для времени спиновой релаксации, умноженного на g -фактор: $g_c\tau_{sc} > g_c T_{sc}^{\min} = (1.3 \pm 0.2)$ нс. Величина g_c в GaAsN неизвестна (известное авторам исследование g в азотсодержащих твердых растворах на основе GaAs [10] посвящено измерению g -фактора свободных электронов в GaInAsN). В специальном эксперименте при наклонном падении света на образец, когда ФЛ измеряется "на отражение" под углом к возбуждающему лучу, а магнитное поле направлено перпендикулярно направлениям возбуждения и регистрации [11], по асимметрии эффекта Ханле мы определили, что $g_c > 0$. Аналогичным способом положительный знак g_c был найден и в пленках GaAsN, содержащих 2.7 и 3.4% азота. Знак g_c позволяет предположить, что

по величине он близок g -фактору свободного электрона в вакууме: $g_c \approx 2$. Тогда можно заключить, что время τ_{sc} превосходит 0.6 нс.

Таким образом, в твердых растворах GaAsN при комнатной температуре обнаружена сильная СЗР. Гигантские время жизни спина и величина спиновой поляризации электронов, возникающие в условиях оптической накачки, позволяют рассматривать азотсодержащие соединения GaAsN в качестве перспективного материала для разработки приборов спинтроники. Обнаружена сильная зависимость круговой поляризации ФЛ и полуширины кривой Ханле от интенсивности возбуждающего света в полупроводнике с собственным типом проводимости. Для объяснения полученных экспериментальных результатов привлечена модель СЗР, в рамках которой объясняются обнаруженные зависимости времени жизни, времени жизни спина и степени спиновой ориентации электронов от интенсивности накачки. Показано, что, несмотря на очень короткое время спиновой релаксации свободных электронов, связанная система свободных и локализованных носителей тока характеризуется также медленным временем спиновой релаксации порядка 1 нс. С помощью эффекта Ханле определено, что g -фактор электронов, локализованных на глубоких центрах, ответственных за наблюдающуюся СЗР, имеет положительный знак.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и JSPS. Авторы признательны К. В. Кавокину и Н. В. Крыжановской за обсуждения.

1. M. Kondow, T. Kitatani, S. Nakatsuka et al., IEEE. J. Sel. Top. Quantum Electron. **3**, 719 (1997).
2. W. Walukiewicz, Physica E **20**, 300 (2004).
3. A. Yu. Egorov, V. K. Kalevich, M. M. Afanasiev et al., J. Appl. Phys. **98**, 13539 (2005).
4. *Optical orientation*, Eds. F. Meier and B. Zakharchenya, North-Holland, Amsterdam, 1984.
5. В. Д. Кульков, В. К. Калевич, ПТЭ **5**, 196 (1980).
6. V. K. Kalevich, M. Ikezawa, A. Yu. Shiryaev et al., Proc. 11th Int. Symp. Nanostructures: Physics and Technology, St.-Petersburg, Russia, 2003, p. 277.
7. C. Weisbuch and G. Lampel, Solid State Commun. **14**, 141 (1974).
8. R. C. Miller, W. T. Tsang, and W. A. Nordland, Jr., Phys. Rev. B **21**, 1569 (1980).
9. D. Paget, Phys. Rev. B **30**, 931 (1984).
10. C. Skierbiszewski, P. Pfeffer, and J. Lusakowski, Phys. Rev. B **71**, 205203 (2005).
11. В. К. Калевич, Б. П. Захарченя, К. В. Кавокин и др., ФТТ **39**, 768 (1977).