

DOI:10.16136/j.joel.2022.05.0674

# 基于飞秒激光对 $\text{PbI}_2$ 薄膜瞬态克尔磁光效应研究

吴彦文<sup>1</sup>, 相广彪<sup>1</sup>, 苗晓娜<sup>1</sup>, 李雨爽<sup>1</sup>, 冷建材<sup>2</sup>, 马红<sup>1\*</sup>

(1. 山东师范大学 物理与电子科学学院, 山东 济南 250358; 2. 齐鲁工业大学(山东省科学院), 电子信息工程学院(大学物理教学部), 山东 济南 250353)

**摘要:** 本文利用飞秒瞬态反射光谱和克尔旋转光谱, 系统研究了溶液法制备的厚度为 $\sim 200$  nm的 $\text{PbI}_2$ 薄膜的动力学过程, 并讨论了自旋弛豫机制。研究表明, 瞬态反射光谱在502 nm处出现漂白峰, 在487和522 nm处出现吸收峰, 分别归因于带填充效应和带隙重整效应。左旋圆偏振光和右旋圆偏振光激发得到的克尔磁光信号符号相反、大小相等, 最大克尔旋转角和椭圆率分别达到 $10^\circ$ 和 $0.12/\mu\text{m}$ 。自旋弛豫寿命随抽运光通量的增加而缩短, 最短弛豫寿命为1.6 ps, 自旋弛豫机制归因于强自旋轨道耦合效应导致的Elliott-Yafet机制。另外, 结果发现克尔磁光效应在带隙附近信号较强。在测量的波长范围内, 自旋弛豫寿命均在几个皮秒量级, 表明了 $\text{PbI}_2$ 材料是制备自旋电子器件的良好材料, 并且在带隙附近灵敏度最高。

**关键词:**  $\text{PbI}_2$  薄膜; 瞬态反射光谱; 克尔旋转光谱; 自旋弛豫寿命

**中图分类号:** O433 **文献标识码:** A **文章编号:** 1005-0086(2022)05-0536-07

## Transient Kerrmagneto-optical effect in $\text{PbI}_2$ thin films by femto-second laser

WU Yanwen<sup>1</sup>, XIANG Guangbiao<sup>1</sup>, MIAO Xiaona<sup>1</sup>, LI Yushuang<sup>1</sup>, LENG Jiancai<sup>2</sup>, MA Hong<sup>1\*</sup>

(1. School of Physics and Electronics, Shandong Normal University, Jinan, Shandong 250358, China; 2. School of Electronic and Information Engineering (Department of Physics), Qilu University of Technology (Shandong Academy of Sciences), Jinan, Shandong 250353, China)

**Abstract:** The carrier and spin dynamics in solution-processed  $\text{PbI}_2$  film on quartz substrate have been systematically studied by transient reflectance (TR) spectroscopy and femtosecond resolved Kerr rotation spectroscopy. The results show that TR spectroscopy includes one band of photo-induced bleach (PB) centered at 502 nm and two bands of photo-induced absorption (PIA) at 487 and 522 nm, which are interpreted by band filling effect and band gap renormalization effect. The Kerr magneto-optical signals excited by left-handed and right-handed circularly polarized light are completely opposite in sign and almost equal in size. With the increase of pump fluence, the Kerr rotation angle and ellipticity increase linearly at first, then slowly, finally reach maximum value,  $\sim 10$  degree and 0.12 per micro, respectively. At the same time, the spin relaxation life decreases a minimum value  $\sim 1.6$  ps. According to our experimental data, the spin relaxation mechanism in  $\text{PbI}_2$  thin films is attributed to the Elliott-Yafet process owing to the strong spin-orbit coupling caused by the heavy atom lead. In addition, we find that Kerr effect has a large signal around the band gap, which suggests that the spintronic devices based on  $\text{PbI}_2$  have high sensitivity around the band gap. These experimental results obtained in this paper are of great significance for exploring the potential applications of  $\text{PbI}_2$  thin films in spintronic devices.

\* E-mail: mahong@sdsu.edu.cn

收稿日期: 2021-10-08 修订日期: 2021-10-25

基金项目: 山东省自然科学基金(ZR2020MA081, ZR2019MA037, ZR2018BA031)资助项目

**Key words:** PbI<sub>2</sub> film; transient reflectivity spectroscopy; Kerr rotation spectroscopy; spin relaxation mechanism

## 1 引言

近几年来,随着电子器件集成度的不断提高,尺寸不断缩小,量子效应、热效应越来越明显,严重地制约了以荷电性为基础的传统半导体电子器件的发展,因此必须基于新材料制备新器件以替代传统的硅基半导体器件<sup>[1]</sup>。自旋电子器件在器件设计中用自旋自由度结合或替代电荷自由度,突破制约传统器件的局限,因此是传统电子器件理想的替代方案之一,也是自旋电子学领域重要的研究内容<sup>[2]</sup>。与传统的电子器件相比,自旋电子器件的集成度更高,稳定性更好,数据处理速度更快,能量损耗更低,并满足半导体器件快速发展的需求。

PbI<sub>2</sub>材料是一种宽带隙半导体,制备方法简单,在光电探测领域表现出优异的应用前景,它制备高效、低噪音、高能量分辨的室温X-和 $\gamma$ -探测器的理想材料<sup>[3]</sup>。因此,纳米团簇、纳米管及层状结构等各种形态的PbI<sub>2</sub>材料已有报道<sup>[4,5]</sup>。理论研究表明,PbI<sub>2</sub>材料的最低导带主要来自Pb原子的 $p_z$ 轨道,最高价带来自I原子的 $p_z$ 轨道,轨道角动量均不为0。根据光学取向原理,携带角动量的圆偏振光( $\sigma^\pm$ )激发PbI<sub>2</sub>材料时,价带电子吸收光子并发生跃迁,跃迁过程中遵守能量和角动量守恒,光子的角动量和能量传给电子和空穴,导带和价带将产生自旋极化载流子。因此,PbI<sub>2</sub>材料中存在强自旋轨道耦合效应(spin-orbit coupling, SOC),SOC为自旋快速弛豫提供了一个通道,导致自旋弛豫寿命变短。目前为止,关于PbI<sub>2</sub>在自

旋动力学方面的研究报道较少<sup>[6]</sup>。因此,本文通过瞬态反射光谱和时间分辨克尔旋转光谱对200 nm厚的PbI<sub>2</sub>薄膜材料进行了系统研究,结果发现PbI<sub>2</sub>薄膜材料在带隙附近具有大的克尔旋转信号和皮秒量级的自旋弛豫寿命,表明PbI<sub>2</sub>薄膜在磁光隔离器、超快光开关和偏振器件的应用方面具有巨大的潜力。

## 2 样品制备和实验方法

PbI<sub>2</sub>薄膜是使用浓度为575 mg/ml的PbI<sub>2</sub>二甲基甲酰胺(dimethyl formamide, DMF)溶液,在石英基片上旋涂成膜,转速为3000 rpm,70 °C环境下热处理5 min,薄膜厚度约为200 nm。溶液制备、旋涂和热处理均在空气中进行。瞬态反射光谱是利用抽运探测技术测量,使用钛宝石激光放大器(ACE),输出激光脉冲中心波长为800 nm,重复频率为1 kHz,脉冲宽度为35 fs,利用偏硼酸钡晶体( $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, BBO)产生400 nm倍频光做为抽运光,探测光为钛宝石晶体产生的超连续白光。克尔磁光效应是指当一束线偏振光入射到沿光传播方向加有外磁场的介质时,反射光的偏振面会转过一个角度,同时变为椭圆偏振光,其偏转角度称为克尔旋转角 $\theta_K$ ,偏振情况变化称为椭圆率 $\epsilon_K$ ,其原理如图1(a)所示。克尔旋转光谱测量利用参量放大激光器(optical parametric amplifier, TOPAS)直接输出的激光脉冲作为光源,波长连续可调。实验光路如图1(b)所示,透过分束镜(beam splitter)功率较大的一束作为抽运光(Pump),经过斩波器(Chopper)和延迟线(delay line),利用1/2波片( $\lambda/2$ )和1/4波片( $\lambda/4$ )将抽运光

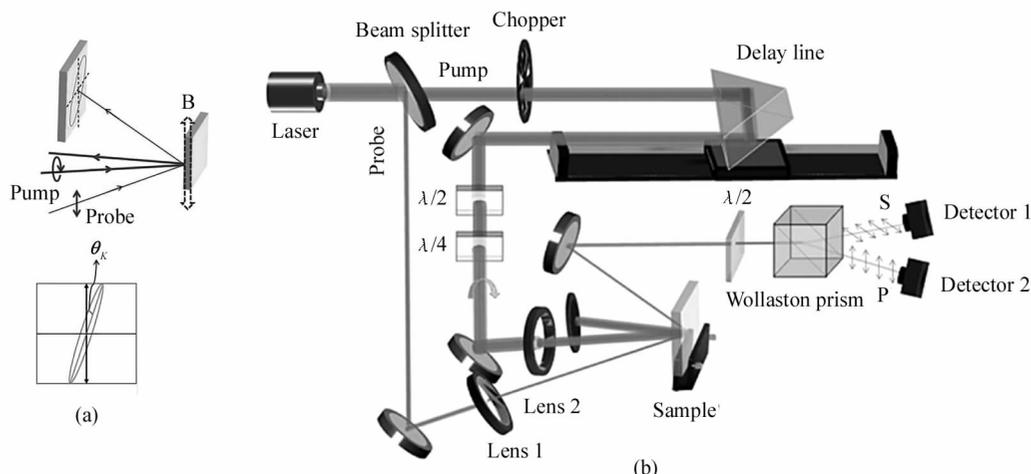


图1 (a) 克尔磁光效应原理; (b) 时间分辨克尔旋转光谱光路示意图

Fig. 1 (a) Schematic diagram of Kerr rotation effect; (b) Experimental setup for time-resolved Kerr rotation spectroscopy

变为圆偏振光,透镜(Lens 2)汇聚后近似垂直的入射到样品表面上,被样品反射后由吸收盒吸收掉。实验过程中,没有外加磁场,而是利用强圆偏振抽运光产生的有效磁场  $B$ ,圆偏振抽运光的入射角较小,有效磁场  $B$  正比于光场的电场强度  $E$ ,即  $B \propto EE^*$ 。经分光镜反射的功率较小的一束作为探测光(Probe),探测光为线偏振光,经样品反射的探测光通过一个光轴与探测光偏振面成  $45^\circ$  夹角的  $1/2$  波片,经渥拉斯顿棱镜(wollaston prism)分解为 S 分量和 P 分量,分别进入 2 个全同的探测器(Detector 1 和 2)。S 分量和 P 分量的差值(S-P)输入锁相放大器,由相连的电脑直接读出。将渥拉斯顿棱镜前的  $1/2$  波片换成  $1/4$  波片,可以测量椭圆偏率  $\epsilon_K$ 。所有实验均在室温下进行。

### 3 结果与讨论

$PbI_2$  薄膜是直接带隙半导体,具有对称结构,其瞬态反射光谱如图 2(a)中插图所示。不同抽运光通量下  $PbI_2$  薄膜的瞬态反射光谱如图 2(a)所示,抽运光波长为 400 nm。从图 2(a)点线( $20.8 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ )可以得出,在带隙位置 502 nm 处出现明显的漂白峰,另外在高能量(487 nm)和低能量(522 nm)2 处出现光诱导吸收现象。大量的价带电子被抽运光激发到导带底附近,价带相应的位置留下空穴,根据泡

利不相容原理,导带和价带的能级有限,当有限的导带和价带能级被填满后,需要高于带隙的能量来激发电子跃迁到导带更高的能级处,即带填充(bandfilling, BF)效应。BF 效应导致的高能量一侧出现吸收,其结果相当于材料的带隙增加,增加量表示为<sup>[7]</sup>:

$$\Delta E_g^{BF}(N) = \frac{\hbar^2}{2m_{ch}^*} (3\pi^2 N)^{2/3}, \quad (1)$$

式中,  $\hbar$  为普朗克常数,  $N$  为激发电子的浓度,  $m_{ch}^* = 0.13 m_0$  是电子空穴的折合质量,得到  $\Delta E_g^{BF} = 41 \text{ meV}$ ,折合为 493 nm,略大于实验值 487 nm。

被激发到导带的电子之间存在库仑力,相互排斥,并且自旋方向相同的电子之间也会互相排斥,最终导致导带底的能量降低。同理空穴导致价带顶的能量增加,最终使得带隙收缩,即带隙重整(band gap renormalization, BGR)效应。因此利用光子能量略小于带隙能量的激光也能激发导带电子跃迁<sup>[8]</sup>。BGR 效应导致的带隙减小可以根据表达式计算<sup>[9]</sup>为:

$$\Delta E_g^{BGR}(N) = - \left( \frac{e}{2\pi\pi_0\epsilon_s} \right) \left( \frac{3N}{\pi} \right)^{1/3} \times \left[ 1 - \exp\left( - \frac{4.8 \times 10^{-24} N \epsilon_s^3}{m_e^3} \right) \right], \quad (2)$$

式中,  $e$  是电子电量,  $\epsilon_s$  是相对介电常数,  $m_e$  是电子有效质量,得到 BGR 效应引起的带隙变化为  $\Delta E_g^{BGR} =$

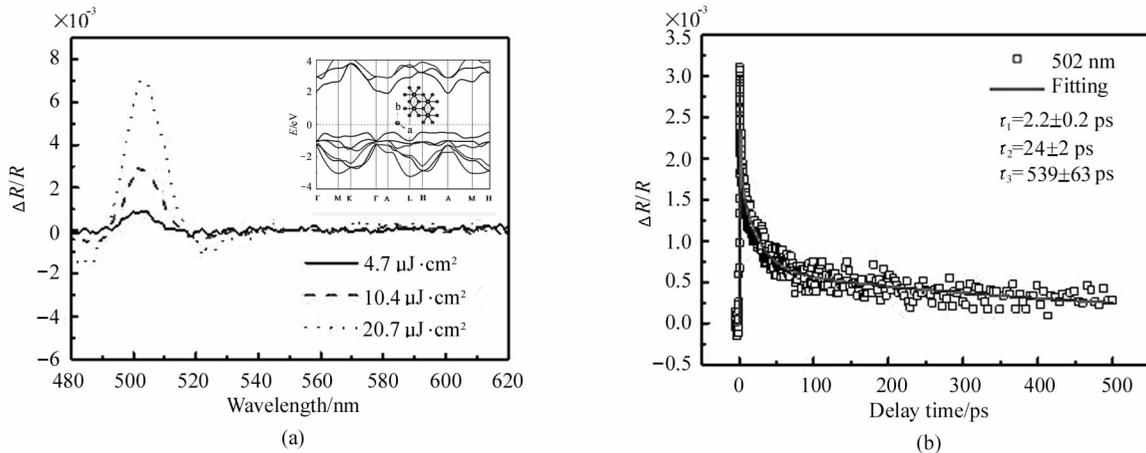


图 2  $PbI_2$  薄膜的瞬态反射光谱:(a) 不同抽运光通量下  $PbI_2$  的瞬态反射光谱,延迟时间为零,抽运光波长为 400 nm,插图为  $PbI_2$  薄膜的能带结构;

(b) ( $\square$ )线是 502 nm 处漂白峰的动力学曲线,实线是三指数拟合曲线,寿命分别是  $\tau_1 = 2.2 \pm 0.2 \text{ ps}$ ,  $\tau_2 = 24 \pm 2 \text{ ps}$ ,  $\tau_3 = 539 \pm 63 \text{ ps}$ ,抽运光通量为  $10.4 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$

Fig. 2 Transient reflection spectra of  $PbI_2$  film: (a) Transient reflection spectra of  $PbI_2$  with different pump fluence at zero delay time and the pump wavelength of 400 nm, where the inset is band structure of  $PbI_2$  film; (b) Kinetic curve at the bleaching peak of 502 nm (square), and triple exponential fitting (solid curve), where the lifetimes obtained by the fitted are  $\tau_1 = 12.2 \pm 0.2 \text{ ps}$ ,  $\tau_2 = 24 \pm 2 \text{ ps}$ ,  $\tau_3 = 539 \pm 63 \text{ ps}$ , respectively, and the pump fluence is  $10.4 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$

-16 meV (~505 nm)。

本文中,只考虑了 BF 和 BGR 效应对带隙的影响,忽略了样品中杂质能级吸收和自由载流子吸收,计算的理论偏移值比实验结果小。另外,根据图 2(a)可以得出,随着抽运光通量的减小,激发载流子浓度降低,ΔR/R 信号的幅度整体减小,漂白峰的位置几乎保持不变。但两侧的吸收峰不仅幅度减小,位置也向着中间的漂白峰移动。当抽运光通量为 10.4 mJ · cm<sup>-2</sup> 时,2 个吸收峰分别位于 489 nm 和 520 nm 处。另外,502 nm 处漂白峰的瞬态动力学过程,如图 2(b)所示,通过 3 指数拟合得到 3 个衰减时间常数,τ<sub>1</sub> = 2.2 ± 0.2 ps,τ<sub>2</sub> = 24 ± 2 ps,τ<sub>3</sub> = 539 ± 63 ps,分别归因于俄歇复合、陷阱俘获和辐射复合。

图 3 是 PbI<sub>2</sub> 薄膜的克尔旋转角 θ<sub>K</sub> (a) 和椭圆率 ε<sub>K</sub> (b) 信号的动力学曲线,激发波长 500 nm,光通量为 28.3 mJ · cm<sup>-2</sup>。2 个图中(●)线和(■)线分别表示抽运光为左旋圆偏振光(left circular polarized, LCP)和右旋圆偏振光(right circular polarized, RCP)激发时的克尔磁光信号,2 条曲线的符号相反,但大小几乎相等,表明 θ<sub>K</sub> 和 ε<sub>K</sub> 的旋转方向与圆偏振

光的旋转方向有关。由于不同旋转方向的圆偏振光光子具有不同的角动量(±ħ),PbI<sub>2</sub> 薄膜中价带电子吸收光子后跃迁至导带,跃迁过程中遵守能量守恒和角动量守恒。由于自旋向上和自旋向下电子的跃迁强度不同,产生的净自旋的自旋极化方向相反,从而产生的有效磁场 B 的方向相反,最终导致克尔信号的方向相反。但是,只要激发光通量相等,产生的有效磁场的强度大小就会相同,克尔旋转信号大小也相同,与之前的实验结果一致。(◆)线表示左旋圆偏振光和右旋圆偏振光激发得到的磁光信号大小的平均值,根据平均值计算得到零延迟时间的 θ<sub>K</sub> 和 ε<sub>K</sub> 分别为 0.93° (~4.65° / μm) 和 0.0146 (~0.073 / μm)。根据图 3 中曲线可以分析出自旋动力学曲线只有 1 个寿命,利用单指数函数拟合 θ<sub>K</sub> 和 ε<sub>K</sub> 动力学曲线,得到自旋弛豫寿命 τ<sub>s</sub> 分别为 2.25 ps 和 2.43 ps,两者基本一致。与图 2(b)中实验结果相比,τ<sub>s</sub> 远小于载流子的辐射复合时间 τ<sub>3</sub>,说明在电子空穴复合之前,自旋弛豫过程已经结束,自旋极化消失,因此,无法利用时间分辨光致荧光光谱技术研究如此快的自旋弛豫寿命。

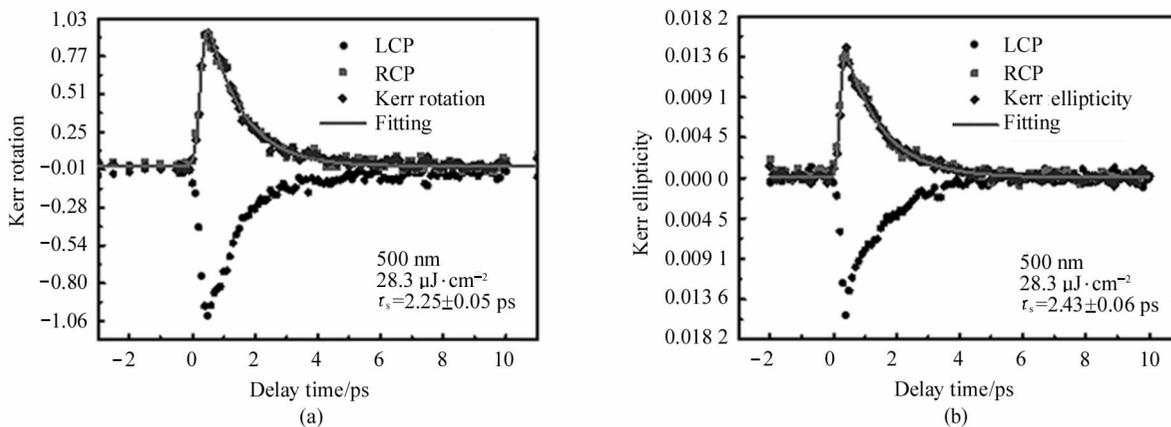


图 3 PbI<sub>2</sub> 薄膜的克尔磁光信号:(a) PbI<sub>2</sub> 薄膜的时间分辨克尔旋转光谱, 克尔旋转角为 0.93°,实线是单指数拟合曲线,自旋弛豫寿命 τ<sub>s</sub> 为 2.25 ± 0.05 ps; (b) PbI<sub>2</sub> 薄膜的时间分辨克尔椭圆率光谱,克尔椭圆率为 0.0146,拟合得到自旋弛豫寿命 τ<sub>s</sub> 为 2.43 ± 0.06 ps 28.3 mJ · cm<sup>-2</sup>,激发光波长为 500 nm,抽运光通量为 28.3 mJ · cm<sup>-2</sup>

Fig. 3 Kerr magneto-optical effect in PbI<sub>2</sub> thin films:(a) Time-resolved Kerr rotation spectra of PbI<sub>2</sub> film, where the Kerr rotation angle is 0.93° at zero delay time,the red solid line is fitted by a single-exponential function and the fitted τ<sub>s</sub> is 2.25 ± 0.05 ps; (b) The time-resolved Kerr ellipticity spectra of the PbI<sub>2</sub> film, where the Kerr ellipticity is 0.0146, τ<sub>s</sub> obtained by fitting is 2.43 ± 0.06 ps, and the PbI<sub>2</sub> film is excited by the wavelength of 500 nm at pump fluence of 28.3 mJ · cm<sup>-2</sup>

PbI<sub>2</sub> 薄膜中 θ<sub>K</sub>、ε<sub>K</sub> 和 τ<sub>s</sub> 对激发光通量的依赖关系如图 4 所示。图 4(a)是 θ<sub>K</sub> (●)和 τ<sub>s</sub> (■)随着抽运光通量的变化。图 4(b)是 ε<sub>K</sub> (●)和 τ<sub>s</sub> (■)随抽运光

通量的变化。根据图 4(a)实验结果可知,随着抽运光通量的增加,θ<sub>K</sub> 非线性变化:在较低的光通量时,θ<sub>K</sub> 线性增加,超过 56.6 mJ · cm<sup>-2</sup> 时,增加缓慢,最

后几乎不变达到饱和值。最大的  $\theta_K$  为  $2.0^\circ$  (即  $10^\circ/\mu\text{m}$ ), 与  $70\text{ nm}$  厚  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$  薄膜在  $200\text{ K}$  时的测量结果 ( $10^\circ \pm 2^\circ/\mu\text{m}$ ) 相当<sup>[10]</sup>, 比掺 Ce 的 YIG 要大 2 个数量级 (掺杂度为 8% 的 Ce:YIG, 在  $1550\text{ nm}$  波长下测得  $\sim 990^\circ/\text{cm}$ )<sup>[11]</sup>。如此大的旋转角, 只需要  $4.5\ \mu\text{m}$  厚的薄膜就可以实现磁光隔离器功能。根据图 4(b) 的实验结果, 随着抽运光通量的增加,  $\epsilon_K$  的变化趋势和旋转角类似, 从  $0.007$  增加到  $0.023$ , 最后逐渐趋于稳定, 此时材料内部的载流子已经被极化。由于  $\text{PbI}_2$  薄膜材料中存在重金属原子 Pb, 出现强的 SOC 效应, SOC 效应导致导带能级分裂, 圆偏振光激光激发材料, 电子吸收光子过程中遵守角动量守恒, 实现近 100% 的自旋极化。而在化合物半导体材料中, 自旋轨道耦合导致价带分裂, 价带顶为重空穴带和轻空穴带的四重兼并能级, 导带底是双重兼并能级。利用圆偏振光激发时, 重空穴带和轻空穴带同时发生跃迁, 跃迁几率比为 3:1, 而且由重空穴带与轻空穴带跃迁产生的电子自旋方向相反, 所以自旋极化度最高为 50%, 小于  $\text{PbI}_2$  薄膜的自旋极化度 ( $\sim 100\%$ )。  $\text{PbI}_2$  薄膜具有较大的克尔旋转信号, 表明其在光隔离器和偏振器件上具有潜在应用。

图 4(a) 和 (b) 中 (■) 线是利用克尔旋转角和椭圆率光谱分别研究  $\text{PbI}_2$  薄膜中  $\tau_s$  随抽运光通量的变化, 实验结果显示随着抽运光通量的增加,  $\tau_s$  逐渐减小, 从  $3.0\text{ ps}$  减小到  $1.6\text{ ps}$ , 皮秒量级的自旋寿命表明  $\text{PbI}_2$  薄膜是制备自旋超快全光开关的优选材

料。  $\text{PbI}_2$  薄膜的自旋寿命与有机无机杂化钙钛矿  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$  薄膜和纯无机钙钛矿  $\text{CsPbI}_3$  量子点的  $\tau_s$  相当<sup>[12]</sup>, 比 GaAs 量子阱的  $\tau_s$  短得多<sup>[13]</sup>。由于  $\text{PbI}_2$  薄膜中存在强 SOC 效应, 自旋和轨道相互作用过程中, 为自旋提供了反转的几率, 加速了自旋弛豫过程, 缩短了自旋弛豫寿命。自旋弛豫机制主要有 DP (D'yakonov-Perel) 机制<sup>[14]</sup>、EY (Elliott-Yafet) 机制<sup>[15]</sup> 和 BAP (Bir-Aronov-Pikus) 机制<sup>[16]</sup>。BAP 机制是指 P 型掺杂半导体中, 存在大量空穴、电子和空穴之间的相互作用导致电子自旋快速弛豫。本文中的  $\text{PbI}_2$  薄膜材料未经掺杂, 可以排除电子空穴相互作用引起的 BAP 机制。DP 机制是指在缺乏空间反演中心的半导体中, Dresselhaus 和 Rashba 效应都可能引起自旋进动的随机化, 逐渐失去自旋极化, DP 过程是传统化合物半导体 GaAs 等的主要弛豫机制。根据图 2 插图可以得出  $\text{PbI}_2$  具有对称结构, DP 机制可以排除。EY 机制是基于 SOC 作用, 具有相反自旋量子数的波函数彼此耦合, 通过碰撞或散射使得载流子自旋发生翻转。理论计算表明  $\text{PbI}_2$  与 GaAs 不同, 导带最低能带是  $p$  态电子, 而不是  $s$  态电子, 存在强的自旋轨道耦合, 因此 EY 机制成为了主要弛豫机制。EY 机制最为显著的特征是自旋弛豫时间  $\tau_s$  与动量弛豫时间  $\tau_p$  成正比, 即  $\tau_s \propto \tau_p$ , 这是它与 DP 机制的最大的区别所在<sup>[17]</sup>。而  $\tau_p$  与载流子浓度  $N$  成反比<sup>[18]</sup>, 随着抽运光通量的增加, 载流子浓度  $N$  增加,  $\tau_p$  逐渐减小, 因此 EY 机制中  $\tau_s$  随抽运光通量的增加而减小, 和图 4 的实验结

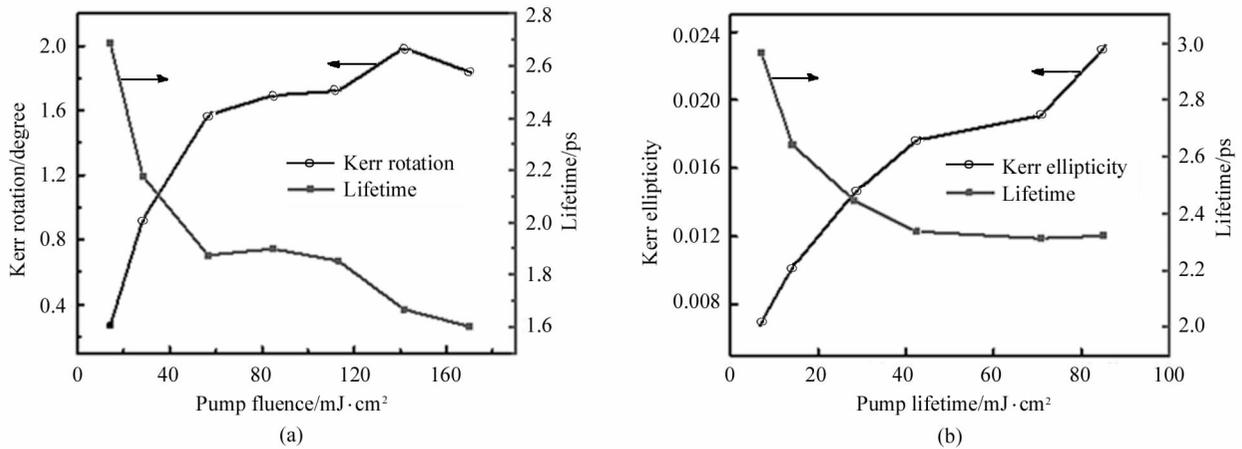


图 4 克尔磁光信号随功率通量的变化曲线: (a)  $\theta_K$  (●) 和  $\tau_s$  (■) 的抽运光通量依赖性, (b)  $\epsilon_K$  (●) 和  $\tau_s$  (■) 的抽运光通量依赖性, 抽运光波长为  $500\text{ nm}$

Fig. 4 Pump fluence dependence of Kerr magneto-optical effect in  $\text{PbI}_2$  thin films;

(a) Pump fluence dependence of Kerr rotation angle (●) and spin relaxation time (■);

(b) Pump fluence dependence of Kerr ellipticity (●) and spin relaxation time (■), where the pump wavelength is  $500\text{ nm}$

果一致。因此 PbI<sub>2</sub> 薄膜中自旋弛豫机制归因于 EY 机制。

$\theta_K$  和  $\epsilon_K$  随抽运光激发波长的变化如图 5(a) 所示,抽运光通量固定为  $28.3 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ ,激发波长变化范围是 480—510 nm,均在带隙附近。实验结果显示,在测量范围内  $\theta_K$  和  $\epsilon_K$  变化迅速,表明只有在带隙附近克尔磁光效应才表现的非常明显,偏离带隙以后,快速消失,这是因为磁光信号与折射率有关,正比于左旋圆偏振光和右旋圆偏振光的折射率之差,即  $\theta_K \propto |n_r - n_l|$ 。根据图 2 瞬态反射光谱实验结果可以得出,反射率的变化率  $\Delta R/R$  只在带隙附近信号较大。由于消光系数  $\kappa(\hbar\omega)$  与折射率  $n(\hbar\omega)$  相比小的多,当  $\Delta R(\hbar\omega)/R$  不是很大 ( $< 0.007$ ) 时,可以近似改写表示为:

$$\frac{\Delta R}{R}(\hbar\omega) = \frac{4}{n(\hbar\omega)^2 - 1} \Delta n(\hbar\omega) \quad (3)$$

根据图 2 可知,  $\Delta n(\hbar\omega)$  的信号也仅发生在带隙附近位置,利用式(3)可以推出克尔旋转效应也在带隙附近表现的非常明显,由此表明 PbI<sub>2</sub> 薄膜材料做成的自旋电子器件在带隙附近灵敏度较高。图 5(b) 是不同的抽运光波长(480 nm, 490 nm 和 500 nm)下  $\tau_s$  随着抽运光通量的变化曲线,可以得出所有激发波长在测量范围内,抽运光通量越大  $\tau_s$  越短。固定的抽运光通量,波长越短,自旋弛豫寿命越短。在所有的波长和光通量下,  $\tau_s$  都在皮秒的数量级。因此,在带隙附近 PbI<sub>2</sub> 薄膜是制备自旋超快光开关的良好材料。

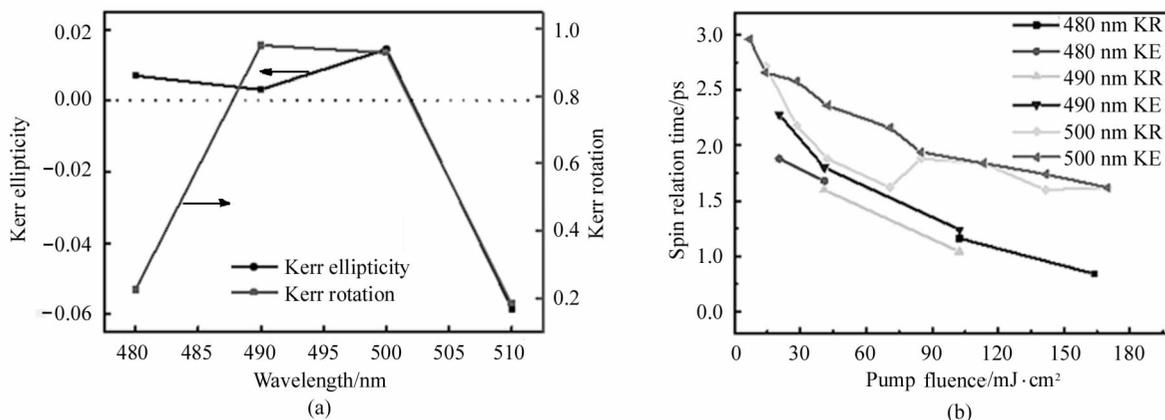


图 5 克尔磁光信号随抽运波长的变化曲线:(a)  $\theta_K$  (■) 和  $\epsilon_K$  (●) 随激发波长的变化,抽运光通量固定为  $28.3 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^2$ ; (b) 不同抽运光波长下,利用  $\theta_K$  (KR) 和  $\epsilon_K$  (KE) 曲线分别拟合的  $\tau$  与抽运光通量的变化曲线

Fig. 5 Wavelength dependence of Kerr magneto-optical effect in PbI<sub>2</sub> thin films:

(a) Pump wavelength dependence of Kerr rotation angle (■) and Kerr ellipticity (●), where the pump fluence is  $28.3 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^2$ ; (b) Pump fluence dependence of spin relaxation time by Kerr rotation angle and Kerr ellipticity spectrum with the wavelength of 480 nm, 490 nm and 500 nm

## 4 结 论

本文利用飞秒分辨的瞬态反射光谱和克尔旋转光谱研究了 PbI<sub>2</sub> 薄膜中载流子动力学特性。研究表明瞬态反射光谱在 502 nm 处出现漂白峰,在 487 nm 和 522 nm 处出现光诱导吸收峰,利用带填充效应和带隙重整效应进行了解释。时间分辨克尔旋转光谱显示,抽运光波长为 500 nm 时,随着抽运光通量的增加, PbI<sub>2</sub> 薄膜的克尔旋转角和椭圆偏率先呈现线性增加,然后缓慢增加达到饱和,最大克尔旋转角和椭圆偏率达到  $10^\circ$  和  $0.12/\mu\text{m}$ 。通过拟合克尔旋转信号

曲线得到载流子的最短自旋弛豫寿命为 1.6 ps,其自旋弛豫机制是 EY 机制。另外,研究发现克尔效应在带隙附近信号较强,表明基于 PbI<sub>2</sub> 材料制备而成的自旋电子器件在带隙附近有较高的灵敏度,研究的所有波长范围内自旋弛豫寿命均在皮秒数量级。总之, PbI<sub>2</sub> 材料具有超大的克尔旋转信号和快速的自旋弛豫时间,表明其在磁光隔离器、偏振器件及超快光开关等自旋电子器件方面有潜在应用。

## 参考文献:

[1] JIN Z M, MA H, MA G H. Opto-magnetic interaction and ul-

- trafast optical manipulation of spin waves[J]. *Progress in Physics*, 2015, 35(5):212-239.  
金钻明,马红,马国宏.光磁相互作用及自旋极化的光学调控[J]. *物理学进展*, 2015, 35(5):212-239.
- [2] WANG J, ZHANG C, LI U H, et al. Spin-optoelectronic devices based on hybrid organic-inorganic trihalide perovskites[J]. *Nature Communications*, 2019, 10(1):1-6.
- [3] SHAH K S, BENNETT P, KLUGERMAN M, et al. Lead iodide optical detectors for gamma ray spectroscopy[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 1997, 44(3):448-450.
- [4] SHKIR M, KHAN M T, ALFAIFY S. Novel Nd-doping effect on structural, morphological, optical, and electrical properties of facilely fabricated  $\text{PbI}_2$  thin films applicable to optoelectronic devices[J]. *Applied Nanoscience*, 2019, 9(7):1417-1426.
- [5] SHKIR M, YAHIA I S, GANESH V, et al. A facile synthesis of Au-nanoparticles decorated  $\text{PbI}_2$  single crystalline nanosheets for optoelectronic device applications[J]. *Scientific Reports*, 2018, 8(1):1-10.
- [6] MA H, MIAO X N, XIANG G B, et al. Subpicosecond magneto-optical response probed by the Kerr rotation technique in  $\text{PbI}_2$  film[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2021, 38(6):1858-1863.
- [7] ZHAN W Y, KU Z L, JIN Z M, et al. Photoinduced charge carrier dynamics and spectral band filling in organometal halide perovskites[J]. *Acta Physica Sinica*, 2019, 68(1):018401.  
赵婉莹,库治良,金钻明,等.有机金属卤化物钙钛矿薄膜中的光诱导载流子动力学和动态带重整效应[J]. *物理学报*, 2019, 68(1):018401.
- [8] BENNETT B R, SOREF R A, DEL ALAMO J A. Carrier-induced change in refractive index of InP, GaAs, and InGaAsP[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1990, 26(1):113-122.
- [9] PRABHU S S, VENGURLEKAR A S. Dynamics of the pump-probe reflectivity spectra in GaAs and GaN[J]. *Journal of Applied Physics*, 2004, 95(12):7803-7812.
- [10] GIOVANNI D, MA H, CHUA J, et al. Highly spin-polarized carrier dynamics and ultralarge photoinduced magnetization in  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$  perovskite thin films[J]. *Nano Letters*, 2015, 15(3):1553-1558.
- [11] IKESUE A, AUNG Y L, YASUHARA R, et al. Giant faraday rotation in heavily Ce-doped YIG bulk ceramics[J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2020, 40(15):6073-6078.
- [12] LI Y, LUO X, LIU Y, et al. Size- and composition-dependent exciton spin relaxation in lead halide perovskite quantum dots[J]. *American Chemical Society Energy Letters*, 2020, 5(5):1701-1708.
- [13] TENG L H, MOU L J. Effect of doping symmetry on electron spin relaxation dynamics in (110) GaAs/AlGaAs quantum wells [J]. *Acta Physica Sinica*, 2017, 66(4):046802.  
滕利华,牟丽君.掺杂对称性对(110)晶向生长 GaAs/AlGaAs 量子阱中电子自旋弛豫动力学的影响[J]. *物理学报*, 2017, 66(4):046802.
- [14] D'YAKONOV M I, KACHOROVSKII V Y. Spin relaxation of two-dimensional electrons in non-centrosymmetric semiconductors [J]. *Soviet Physics-Semiconductors*, 1986, 20(1):110-112.
- [15] YAFET Y. G factors and spin-lattice relaxation of conduction electrons[J]. *Solid State Physics*, 1963, 14(6):1-98.
- [16] BIR G L, ARONOV A G, PIKUS G E. Spin relaxation of electrons due to scattering by holes[J]. *Journal of Experimental & Theoretical Physics*, 1975, 42(4):705-712.
- [17] WANG J W, LI S S, XIA J B. Spin relaxation in semiconductors; from bulk materials to quantum wells, quantum wires, quantum dots [J]. *Progress in Physics*, 2006, 26(2):228-249.  
王建伟,李树深,夏建白.半导体中的自旋弛豫——从体材料到量子阱、量子线、量子点[J]. *物理学进展*, 2006, 26(2):228-249.
- [18] ZUO Z G, WANG P, LING F R, et al. Effect of optical pumping on the momentum relaxation time of graphene in the terahertz range[J]. *Chinese Physics B*, 2013, 22(9):097304.

#### 作者简介:

马红 (1978—),女,博士研究生,副教授,硕士生导师,主要从事半导体中的非线性光学、发光和超快动力学等方面的研究。