

# 电子自旋偏振度及其弛豫过程的飞秒激光 吸收光谱研究<sup>\*</sup>

赖天树<sup>†</sup> 刘鲁宁 雷 亮 寿 倩 李熙莹 王嘉辉 林位株

(中山大学光电材料与技术国家重点实验室 物理系, 广州 510275)

(2004 年 4 月 27 日收到, 2004 年 6 月 25 日收到修改稿)

基于二能级体系的速率方程, 获得了非完全初始自旋偏振极化条件下的自旋偏振向上和向下载流子布居弛豫的解析解. 基于小信号近似, 给出了左、右旋圆偏振探测光的饱和吸收变化的表达式. 此表达式中含有电子布居的初始自旋偏振度参数, 因而用此表达式拟合实验数据能够直接获取电子布居的初始自旋偏振度, 而电子布居的初始自旋偏振度在自旋偏振运输研究中是一个非常重要的关键参数. 实验获得了 GaAs/AlGaAs 多量子阱结构中光注入电子布居的初始自旋偏振度及其弛豫时间常数.

关键词: 圆偏振抽运-探测技术, 电子自旋偏振度, 自旋偏振弛豫, GaAs 量子阱

PACC: 7847, 7320D, 7865K

## 1. 引 言

未来的自旋电子器件是要利用半导体及其量子结构材料中的电子自旋自由度的偏振态作为信息载体和逻辑位, 实现量子计算<sup>[1]</sup>. 这就要求电子自旋偏振具有足够长的寿命和空间运输距离, 以满足器件对电子自旋偏振的逻辑控制和运算. 目前的基础研究主要集中在对 III-V 半导体及其量子阱结构中载流子的自旋偏振弛豫<sup>[2-6]</sup>和运输<sup>[7-9]</sup>的理论和实验研究, 了解影响自旋偏振寿命和运输距离的因素, 探索延长自旋偏振寿命和运输距离及控制自旋偏振态的途径. 目前发展的电子自旋偏振弛豫检测方法主要有发光圆偏振度分析法<sup>[6-9]</sup>和圆偏振光饱和吸收法<sup>[2-4]</sup>. 发光圆偏振度分析法基于自旋偏振向上和向下电子辐射复合时分别发出左、右旋圆偏振光. 借助 1/4 波片和偏振片, 用条纹照相机可分别获得时间分辨的左、右旋圆偏振光强度, 进而根据定义计算出发光的圆偏振度的时间弛豫. 基于电子自旋偏振度与发光的圆偏振度相同的基本假设, 则获得了电子自旋偏振度的时间弛豫. 发光圆偏振度分析法的优点是不仅能获得电子自旋偏振弛豫时间常数,

而且能获得电子布居的初始自旋偏振度, 所以, 被广泛用于电子自旋偏振运输的实验研究<sup>[7-9]</sup>, 因为电子自旋偏振运输指电子自旋偏振度的空间运输, 要求实验测量初始电子自旋偏振度随空间距离的变化, 由此给出电子自旋偏振的空间运输尺度. 发光圆偏振度分析法的缺点是基于电子自旋偏振度等于发光的圆偏振度的假设, 并且要求激发态自旋偏振电子有大的辐射复合概率. 所以, 实验测量通常在低温下进行, 以提高辐射复合概率, 增加发光效率. 然而, Proyr 和 Flatté<sup>[10]</sup>最近的研究结果表明电子自旋偏振度等于发光的圆偏振度这一假设并不总是有效. 他们在自组装的 InAs/GaAs 量子点结构中发现发光的圆偏振度依赖于量子点的形状, 并且发光的圆偏振度是各向异性的. 当注入电子自旋偏振度为 100% 时, 沿 [110] 方向发光的圆偏振度仅为 5%, 而沿生长方向发光的圆偏振度接近 100%. 这一发现对发光圆偏振度分析法的适用范围和测试几何结构提出了限制. 此外, 对于弱的或完全非辐射复合的电子自旋偏振弛豫过程诊断, 发光圆偏振度分析法也不适用, 通常使用时间分辨圆偏振光饱和吸收法, 即时间分辨圆偏振光抽运-探测光谱<sup>[2-4]</sup>. 这种光谱技术使用左、右旋圆偏振光分别测量自旋偏振向上

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号 60378006, 60178020, 10274107)和国家自然科学基金重大项目(批准号 60490290)资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail: stslts@zsu.edu.cn

和向下的电子布居弛豫,获取电子自旋偏振弛豫时间常数,但不能给出电子布居的初始自旋偏振度.事实上,目前的圆偏振光抽运-探测光谱理论假设电子布居的初始自旋偏振度为 100%<sup>[4]</sup>,因为用纯的左或右旋圆偏振光激发非简并体系,如量子阱、线和点材料,理论上是可以获得 100% 初始自旋偏振布居的.然而,即使 100% 初始自旋偏振布居,在空间输运过程中,随着偏离激发源点的距离增加,初始自旋偏振度总是会衰减的,而这种光谱却不能给出小于 1 的实际电子自旋偏振度,所以,没能在电子自旋偏振输运的实验研究中得到应用.

本文基于二能级体系速率方程和小信号近似,获得了任意初始自旋偏振度布居条件下左、右旋圆偏振探测光的饱和吸收变化弛豫的解析表达式.此表达式中含有电子布居的初始自旋偏振度参数,因而适合任意初始自旋偏振度布居弛豫研究,并能给出初始自旋偏振度和自旋偏振弛豫时间常数.从而将抽运-探测光谱技术发展为一种新的电子自旋偏振输运实验研究方法.应用这种方法实验研究了椭圆偏振光抽运激发 GaAs 量子阱产生的非完全初始自旋偏振电子布居的时间弛豫,获得了电子的初始自旋偏振度和弛豫时间常数.

## 2. 非完全初始自旋偏振极化圆偏振抽运-探测光谱理论

设  $N_+(t)$ ,  $N_-(t)$  分别为二能级体系激发态上  $t$  时刻自旋偏振向上、向下的载流子布居数密度.由于自旋偏振弛豫和载流子复合,此二能级体系的速率方程为<sup>[4]</sup>

$$\begin{aligned} \frac{dN_+(t)}{dt} &= -\frac{N_+(t)}{T_s} + \frac{N_-(t)}{T_s} - \frac{N_+(t)}{T_r}, \\ \frac{dN_-(t)}{dt} &= -\frac{N_-(t)}{T_s} + \frac{N_+(t)}{T_s} - \frac{N_-(t)}{T_r}, \end{aligned} \quad (1)$$

式中  $T_r$  和  $T_s$  分别为载流子的复合和自旋偏振弛豫时间常数.

设  $\delta$  脉冲椭圆偏振抽运光激发的初始载流子布居总密度为  $N^0$ , 其中自旋偏振向上和向下的载流子布居密度分别为  $N_+^0$  和  $N_-^0$ , 则  $N^0 = N_+^0 + N_-^0$ . 在此初始条件下,速率方程(1)的解为

$$N_{\pm}(t) = \frac{N^0}{2} (1 \pm P_0 e^{-2t/T_s}) e^{-t/T_r}, \quad (2)$$

式中  $P_0 = (N_+^0 - N_-^0)/N^0$ , 为初始布居的自旋偏振度.

在小信号近似下,二能级体系的吸收系数可表示为<sup>[11]</sup>

$$\alpha(t, N) = \frac{\alpha_0}{1 + N/N_s} \approx \alpha_0 \left(1 - \frac{N}{N_s}\right), \quad (3)$$

式中  $\alpha_0$  为二能级体系的线性吸收系数,  $N_s$  为二能级体系的激发态饱和布居密度,  $N$  为激发态实际非平衡布居密度.小信号近似指  $N/N_s \ll 1$ .

$\delta$  脉冲左、右旋圆偏振探测光分别通过二能级体系样品后,由于(3)式的吸收变化,透射的左、右旋圆偏振探测光强分别为

$$\begin{aligned} I_{\pm}(t) &= I_{\pm}^0 e^{-\alpha_{\pm}(t)NL} \\ &\approx I_{\pm}^0 e^{-\alpha_0 L (1 + \alpha_0 L N_{\pm}(t)/N_s^{\pm})}, \end{aligned} \quad (4)$$

式中  $I_+^0$ ,  $I_-^0$  分别为左、右旋圆偏振探测光的入射光强,  $L$  为样品的厚度,  $N_s^+$  和  $N_s^-$  分别为激发态自旋偏振向上和向下的饱和布居密度.

方程(2)代入(4)式得样品透射光强的变化率为

$$\begin{aligned} \frac{\Delta I_{\pm}(t)}{I_{\pm}^T} &= \frac{I_{\pm}(t) - I_{\pm}^T}{I_{\pm}^T} \\ &= \alpha_0 L \frac{N^0}{N_s} (1 \pm P_0 e^{-2t/T_s}) e^{-t/T_r}, \end{aligned} \quad (5)$$

式中  $I_{\pm}^T = I_{\pm}^0 e^{-\alpha_0 L}$  为左、右旋圆偏振探测光的线性透射光强.

方程(5)即为  $\delta$  脉冲左、右旋圆偏振光探测电子自旋偏振弛豫时透射光强变化率的理论公式.用其拟合实验信号,则可获得电子自旋偏振弛豫时间常数  $T_s$  和电子布居的初始自旋偏振度  $P_0$ , 最终获得电子自旋偏振度弛豫关系

$$P(t) = P_0 e^{-t/T_s}, \quad (6)$$

上式形式上与发光圆偏振度分析法的测试结果一致.但是,在发光圆偏振度分析法中,上式成立是有条件的和基于一个基本假设.而本文中(6)式是无条件成立的.

当空间扫描圆偏振探测光斑,对每一空间位移  $x$  (相对抽运激发源点),在该点做时间分辨扫描,获得的实验信号用方程(5)拟合,则可得该点的初始电子自旋偏振度  $P_0(x)$ . 由  $P_0(x)$  随  $x$  衰减曲线,则可获得电子自旋偏振输运尺度.因而,本文发展圆偏振光抽运-探测光谱作为电子自旋偏振输运测量的新方法.

考虑实际的抽运和探测光脉冲包络有限宽度对实验信号分辨率的影响,实验探测到的实际透射光强变化率应为

$$S_{\pm}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\Delta I_{\pm}(t-t')}{I_{\pm}^T} \alpha(t') dt', \quad (7)$$

式中  $\alpha(t)$  为抽运光脉冲包络  $I_{pu}(t)$  和探测光脉冲包络  $I_{pr}(t)$  的时间相关函数, 即

$$\alpha(t') = \int_{-\infty}^{\infty} I_{pu}(t'+\tau) I_{pr}(\tau) d\tau. \quad (8)$$

实验测量  $C(t)$ , 并用其解卷积实验探测信号  $S(t)$ , 则可消除脉冲宽度对实验信号分辨率的影响. 通常仅当弛豫时间常数  $T_s$  与激光脉冲宽度相当时, 解卷积运算才是必要的. 反之, 当  $T_s$  远大于激光脉冲宽度时, 可忽略激光脉宽的影响, 直接用方程 (5) 拟合实验信号, 获取自旋偏振弛豫时间常数  $T_s$  和初始电子自旋偏振度  $P_0$ .

### 3. 多量子阱中电子自旋偏振度及其弛豫实验研究

GaAs 量子阱的能级结构如图 1 所示. 由于量子约束效应, 价带顶的轻、重空穴能级分裂, 但轻、重空穴能级各自仍是二重简并的. 轻、重空穴能级的二重简并态分别为  $|3/2, -1/2\rangle, |3/2, 1/2\rangle$  和  $|3/2, -3/2\rangle, |3/2, 3/2\rangle$ . 导带中电子能级也是二重简并的, 二重简并态为  $|1/2, -1/2\rangle$  和  $|1/2, 1/2\rangle$ . 当使用左旋圆偏振光  $\sigma^+$  ( $m_j = -1$ ) 激发时, 则通过  $|3/2, 3/2\rangle \rightarrow |1/2, 1/2\rangle$  跃迁向导带注入自旋偏振向上电子布居, 而通过  $|3/2, 1/2\rangle \rightarrow |1/2, -1/2\rangle$  跃迁注入自旋偏振向下电子布居. 由于重空穴态的激发强度是轻空穴态的 3 倍, 所以, 导带中电子的净自旋偏振向上, 初始自旋偏振度为 50%. 同理, 用右旋圆偏振光  $\sigma^-$  ( $m_j = 1$ ) 激发价带电子, 则通过  $|3/2, -3/2\rangle \rightarrow |1/2, -1/2\rangle$  和  $|3/2, -1/2\rangle \rightarrow |1/2, 1/2\rangle$  跃迁向导带注入净自旋偏振向下, 初始自旋偏振度为 50% 的电子布居. 由于左旋椭圆偏振光包含强度占优的

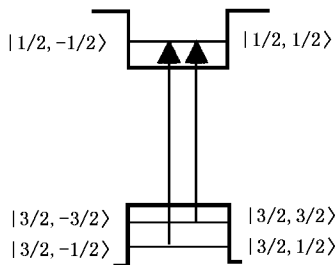


图 1 GaAs 量子阱的能级结构

左旋圆偏振光和弱的右旋圆偏振光, 所以, 用左旋椭圆偏振光激发时, 仍能向导带注入净自旋偏振向上的初始电子布居, 但电子的初始自旋偏振度小于 50%. 同理, 用右旋椭圆偏振光激发, 也能向导带注入净自旋偏振向下的、初始自旋偏振度小于 50% 的电子布居.

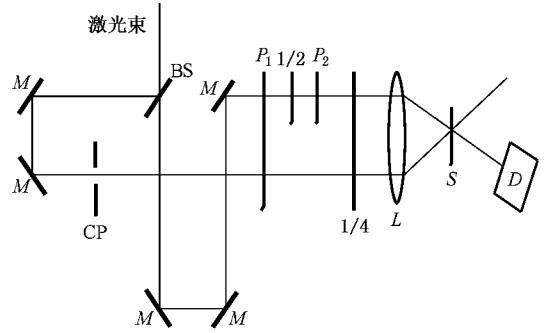


图 2 圆偏振抽运-探测实验光路原理图

实验装置原理图如图 2 所示. 来自钛宝石自锁模激光器的约 80fs 脉宽, 中心波长 827nm, 重复率 82MHz 的线偏振激光脉冲序列通过分束片 BS 后分为两束, 强的反射束通过两个反射镜 M 组成的可移动延时臂和斩波器 CP 后, 通过起偏器  $P_1$  和 1/4 波片变为左旋微椭圆偏振光, 通过透镜 L 聚焦到 GaAs/AlGaAs 多量子阱薄膜样品 S 上, 向导带注入净自旋偏振向上的初始电子布居. 透过 BS 的弱光束经 M 反射后通过起偏器  $P_1$ , 1/2 波片、检偏器  $P_2$  和 1/4 波片变为左旋或右旋圆偏振光, 再通过 L 聚焦到样品 S 上的激发点, 探测自旋偏振电子布居弛豫. 光电探测器 D 输出的电信号输入锁相放大器, 斩波器 CP 输出信号作为锁相放大器的参考信号, 则锁相放大器的输出信号即为圆偏振探测光透射强度的变化量. 此变化量随延迟时间的变化则反映了电子自旋偏振的弛豫, 由方程 (5) 描述.

### 4. 实验结果及其讨论

实验结果如图 3 中点线所示. 图中标注为 ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^+$ ) 的上曲线为左旋微椭圆偏振光抽运, 左旋圆偏振光探测的弛豫信号, 反映了由于自旋退偏振和电子复合引起初始自旋偏振向上电子布居数的衰减. 标注为 ( $-, -$ ) 的中间曲线为抽运与探测为平行线偏振时的透射光强变化, 反映导带电子由于复合引起的总电子布居密度衰减. 标注为 ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) 的

下曲线为相同左旋微略椭圆偏振光抽运,右旋圆偏振光探测的透射光强变化.该信号逐渐增强,表明自旋向下偏振电子布居密度随时间增加,这正是初始自旋偏振向上电子退自旋偏振,转化为自旋偏振向下的电子,从而使自旋向下偏振电子布居密度增加.

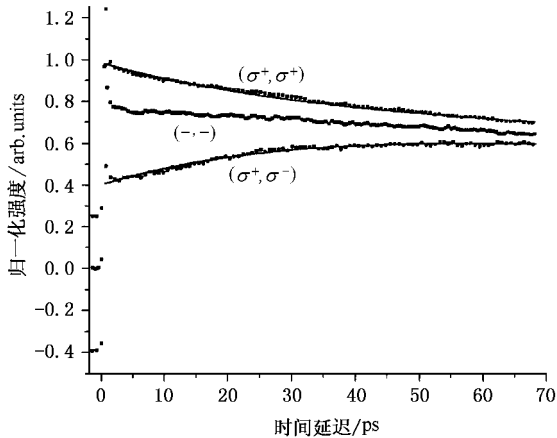


图3 GaAs 多量子阱中电子自旋偏振弛豫

图3表明电子自旋偏振弛豫时间在皮秒尺度,远大于激光脉冲宽度,因此,激光脉冲宽度对自旋弛豫信号分辨率的影响可以忽略,直接用方程(5)拟合实验信号.最小二乘拟合结果如图3中实线所示,获得电子自旋偏振弛豫时间常数  $T_s = (72 \pm 5)$  ps、电子复合时间常数  $T_r = (510 \pm 10)$  ps 和初始电子自旋偏振度  $P_0 = 0.52$ . 这是首次用抽运-探测光谱直接实验获取电子初始自旋偏振度. 电子初始自旋偏

振度  $P_0 > 0.5$  是因为激发光的中心波长与重空穴吸收峰共振,所以,重空穴带的激发光强度大于轻空穴带的激发光强度,结果重、轻空穴带的激发强度比大于3,因而,初始电子自旋偏振度  $P_0 = 0.52 > 0.5$  是合理的.

室温下引起电子自旋退偏振的主要机理是 DP 过程. Tackeuchi 等人<sup>[4]</sup>给出了 DP 退偏振机理主导下的电子自旋偏振弛豫时间常数经验公式

$$T_s = 1.0 \times 10^{-6} E_{1e}^{-2.2} \quad (9)$$

式中  $E_{1e}$  为阱内导带中电子最低能级的能量,单位为 meV.

实验样品的线性吸收光谱表明重空穴激子的吸收峰在 827nm,由此可估算出  $E_{1e} \approx 70$ meV. 代入(9)式计算得  $T_s = 87$ ps,与本文的  $(72 \pm 5)$  ps 实验结果较好符合.

## 5. 结 论

发展了圆偏振抽运-探测光谱理论,使其扩展到非完全初始自旋偏振极化的自旋偏振弛豫过程研究,并能给出电子布居的初始自旋偏振度,从而使圆偏振抽运-探测光谱成为一种新的电子自旋偏振输运实验研究方法.应用此方法实验研究了 GaAs 多量子阱的电子自旋偏振弛豫,获得电子自旋偏振弛豫时间常数为  $(72 \pm 5)$  ps 和初始自旋偏振度  $P_0 = 0.52$ . 与理论预计基本一致.

[1] Das S S *et al* 2001 *Solid State Commu.* **119** 207  
 [2] Hilton D J, Tang C L 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** (14) 146601  
 [3] Miller A *et al* 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 3734  
 [4] Tackeuchi A *et al* 1999 *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** Part 1 4680  
 [5] Krishnamurthy S, Schilfgaarde M Van and Newman N 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 1761

[6] Gerlovin I Y *et al* 2004 *Phys. Rev. B* **69** 35329  
 [7] Sanada H *et al* 2003 *J. Superconductivity* **16** 217  
 [8] Sogawa T *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 276601  
 [9] Levy J *et al* 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1948  
 [10] Proyr C E and Flatte M E 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 257901  
 [11] Chemla D S *et al* 1984 *IEEE J. Quantum Electron* **20**(3) 265

# Electron-spin polarization and its relaxation probed by femtosecond laser absorption <sup>\*</sup>

Lai Tian-Shu Liu Lu-Ning Lei Liang Shou Qian Li Xi-Ying Wang Jia-Hui Lin Wei-Zhu

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

( Received 27 April 2004 ; revised manuscript received 25 June 2004 )

## Abstract

Based on the rate equations of a two-level system, the analytical solutions of relaxation of carrier populations with spin-up and spin-down polarization are obtained under the condition of incomplete initial spin polarization. In the small signal regime, the saturated absorption-change expression of right- and left-circularly polarized probe beam is given. The parameter, initial degree of spin polarization of electron population, appears in the expression. Therefore, the initial degree of spin polarization of electron population, which is a very important key parameter in the transport of spin polarization, can be extracted by fitting the expression to the saturated absorption trace obtained experimentally. Finally, the initial degree of spin polarization of photo-injected electron population and its relaxation time constant in GaAs/AlGaAs multiple quantum wells are acquired in experiments.

**Keywords** : circularly-polarized pump-probe technique, degree of electron-spin polarization, spin-polarized relaxation, GaAs quantum wells

**PACC** : 7847, 7320D, 7865K

---

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant Nos. 60378006, 60178020, 10274107 ) and the Major Program of the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 60490290 ).