

# GaAs 中电子 $g$ 因子的温度和能量依赖性的 飞秒激光吸收量子拍研究\*

徐海红 焦中兴 刘晓东 雷亮 文锦辉 王惠 林位株 赖天树†

(中山大学光电材料与技术国家重点实验室, 物理系, 广州市 510275)

(2005 年 8 月 12 日收到, 2005 年 10 月 18 日收到修改稿)

采用时间分辨椭圆偏振光抽运-探测光谱研究磁场作用下本征 GaAs 中电子自旋弛豫动力学, 观察到吸收量子拍现象. 这种吸收量子拍起源于电子自旋的拉莫尔进动, 因而其拍频成为高精度测量电子  $g$  因子的一种新方法. 利用这种新方法研究了本征 GaAs 中电子  $g$  因子的温度和能量依赖特性, 发现  $g$  因子随电子的温度和能量增加而增加, 但与  $k \cdot p$  理论预测相差甚大. 基于实验结果拟合, 我们给出了一个  $g$  因子的温度和能量依赖的经验公式.

关键词: 椭圆偏振光抽运-探测光谱, 自旋量子拍,  $g$  因子, GaAs

PACC: 7847, 7360F, 7820L

## 1. 引 言

Landé  $g$  因子最初是为了解释光谱线在磁场中的分裂, 反映原子核磁矩与核自旋角动量的关系而引入的修正参量, 与物质磁性以及原子在外磁场中的表现等有密切关系. 在半导体中,  $g$  因子反映电子自旋与晶格场作用和自旋-轨道耦合作用. 电子  $g$  因子在电子自旋磁矩和 Zeeman 分裂能的计算及半导体带结构计算的测试等方面都是关键参数, 因而实验测量半导体中电子  $g$  因子具有重要意义. 然而, GaAs 中电子  $g$  因子的实验数据并不完善, 目前实验上仅获得导带底部的  $g$  因子<sup>[1,2]</sup>, 而具有过超能量的导带电子的  $g$  因子尚未见报道, 但它对带结构计算的测试非常重要, 因为  $k \cdot p$  理论预计电子  $g$  因子强烈地依赖带结构<sup>[3]</sup>. 已发展了多种电子  $g$  因子测量方法. 早期的  $g$  因子测量方法主要有光探测磁共振<sup>[4]</sup>、光伏探测磁共振<sup>[5]</sup>、Hanle 效应<sup>[6]</sup>和自旋翻转拉曼散射<sup>[7]</sup>等. 这些方法均是在频域中测量, 因而测量精度受谱线宽度的非均匀展宽影响大. 此外, 还受限于激发态的长寿命要求和低的探测信噪比等因素. 十多年来, 随着超短激光脉冲的容易获取, 发展了多种时域测量技术, 如时间分辨发光量子

拍<sup>[1,2,8-10]</sup>、时间分辨克尔<sup>[11]</sup>或法拉第<sup>[12]</sup>旋转量子拍、时间分辨线偏振光吸收量子拍<sup>[13]</sup>和时间分辨圆偏振光吸收量子拍<sup>[14]</sup>等光谱技术. 时间分辨量子拍技术不仅克服了频域测量技术的缺点, 而且具有测量精度高, 物理图像清晰等优点, 因而被广泛应用于 GaAs<sup>[1,2,8]</sup>及其量子结构<sup>[9-13]</sup>的电子  $g$  因子测量. 时间分辨发光量子拍光谱已被应用于 GaAs 的  $g$  因子及其温度依赖测量<sup>[1,2]</sup>. 由于发光效率通常在低温下较高, 所以, 发光量子拍技术限于低温条件下应用. 此外, 发光量子拍光谱通常使用条纹照相机实现时间分辨, 所以, 时间分辨率受条纹相机的时间分辨率限制, 通常在皮秒量级. 时间分辨克尔或法拉第旋转量子拍<sup>[11,12]</sup>光谱要求探测线偏振光的偏振面的微小转角, 需要使用高灵敏度的平衡光桥探测系统, 因而, 探测系统较复杂. 这种量子拍技术已被应用于 n-GaAs<sup>[12]</sup>及其量子阱<sup>[11]</sup>的  $g$  因子测量. 时间分辨线偏振光吸收量子拍光谱技术<sup>[13]</sup>具有实验设备简单、操作容易的优点, 但由于这种量子拍起源于电子自旋在纵向磁场中的 Zeeman 分裂态之间的干涉, 所以, 探测线偏振光的带宽与磁场强度之间必须满足一定的约束关系, 才能观察到明显的量子拍. 时间分辨圆偏振光吸收量子拍起源于电子自旋绕垂直磁场的拉莫尔进动<sup>[14]</sup>, 但要获得高纯度的圆偏振光需要

\* 国家自然科学基金(批准号: 60378006, 10274170)和国家自然科学基金重大项目(批准号: 60490290)及广东省自然科学基金(批准号: 04009736)科技厅重点引导项目(批准号: 2004B10101006)、高等学校博士学科点基金(批准号: 20050558030)资助的课题.

† E-mail: stslts@zsu.edu.cn

昂贵的 Soleil-Babinet 补偿器和精密调节补偿器的方位角,因而,这种量子拍光谱的实验设备造价高,实验难度较大.本文将应用我们发展的椭圆偏振光抽运-探测光谱<sup>[15]</sup>研究磁场中本征 GaAs 的电子自旋弛豫动力学,发展一种新的椭圆偏振光吸收量子拍光谱.这种吸收量子拍光谱具有设备简单、操作容易和适用范围广等优点,并被应用于本征 GaAs 的电子  $g$  因子及其温度、能量依赖研究.

## 2. 实验装置

图 1 所示为实验装置原理图.钛宝石自锁模激光器输出脉宽约为 80fs、重复率为 82MHz 的线偏振激光脉冲列,经过分束镜 BS 分为强度比为 2:1 的抽运和探测光.抽运光经  $M_1$  和  $M_2$  组成的固定臂后通过斩波盘 C、 $\lambda/2$  和  $\lambda/4$  波片,产生左或右旋椭圆偏振光.波片为商业制造精度的消色差波片,免去了圆偏振光吸收量子拍所需要的高精度波片-Soleil-Babinet 补偿器.波片的方位角也只需要通过眼睛目测设置在大约 45 度即可,不需要精密调节,因而极大地降低了实验操作难度.探测光经  $M_3$ 、 $M_4$  和  $M_5$  组成的可变延迟臂后与抽运光平行地通过四分之一波片,产生右旋椭圆偏振探测光.平行传播的椭圆偏振抽运和探测光通过凸透镜 L (焦距长为 75mm) 聚焦,并穿过低温装置的四个光学观察窗之一,会聚于

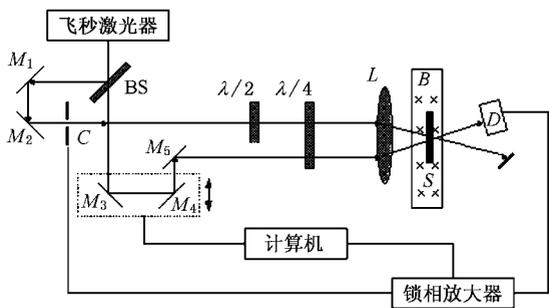


图 1 实验装置原理图. BS 为分束镜;  $M_1$ — $M_5$  为全反射镜; C 为斩波盘;  $\lambda/2$ 、 $\lambda/4$  分别为半波片和四分之一波片; L 为聚焦透镜; B 为垂直外加磁场; S 为样品; D 为探测器; 实线矩形框表示光学低温室

样品 S 上同一点,透过样品的椭圆偏振探测光强变化由光电二极管 D 探测; D 输出的电信号由斩波盘 C 输出信号同步的锁相放大器检测.锁相放大器输出信号通过 A/D 转换后输入计算机.探测光相对抽运光的时间延迟由计算机控制可变延迟臂移动实

现.本征 GaAs 样品薄膜厚度为  $1\mu\text{m}$ ,由分子束外延沿 (001) 方向生长,无应力安装在宝石衬底片上,并置于液氮闭路循环制冷低温光学装置的真空样品室中.外加磁场与样品面平行,并垂直于抽运-探测光平面,由钕铁硼 (NdFeB) 永磁体产生,具有磁场强度 1.41 T.

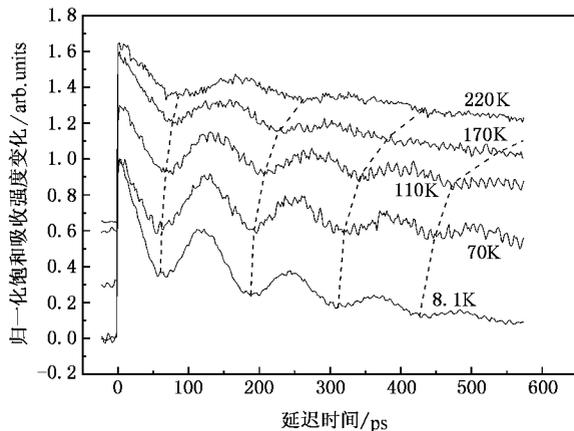


图 2 不同温度下电子自旋的偏振弛豫.其中 110K, 170K 和 220K 的三条曲线的零基线依次上移.激光波长  $\lambda = 815\text{nm}$

## 3. 实验结果及讨论

图 2 所示为五个典型温度下,在 815nm 波长处获得的椭圆偏振探测光的吸收饱和变化随延迟时间扫描的归一化曲线.抽运光和探测光均为右旋椭圆偏振光,样品前的抽运光功率为 7mW,激发样品产生的电子浓度约为  $1.5 \times 10^{18}\text{cm}^{-3}$ .

由图 2 所示,饱和衰减过程包含明显的周期振荡,此即吸收量子拍.这种量子拍起源于电子自旋绕垂直磁场的拉莫尔进动,原理上类似于圆偏振光的饱和和吸收量子拍<sup>[14]</sup>.右旋椭圆偏振抽运光激发 GaAs 样品,向导带中注入自旋向上占优的初始电子布居,导致右旋椭圆偏振探测光的饱和增强,结果在延迟零点处出现透射峰<sup>[15]</sup>;然而,由于存在与电子自旋取向垂直的外加磁场,电子自旋会绕磁场作拉莫尔进动,导致自旋向上态 ( $|1/2\rangle$ ) 与自旋向下态 ( $| -1/2\rangle$ ) 之间的电子布居耦合交换,结果使激发态的电子自旋偏振度以拉莫尔进动频率振荡.当延迟时间为半个拉莫尔进动周期时,  $|1/2\rangle$  和  $| -1/2\rangle$  态之间的电子布居刚好完全交换,电子自旋偏振度变为负的最大值,此时激发态是一个自旋向下占优的布居态,导致右旋椭圆偏振探测光饱和和减弱、吸收增强,对应吸收量子拍的谷.当延迟时间为一个拉莫尔

进动周期时,电子自旋的拉莫尔进动完成一个周期,  $|1/2\rangle$  和  $|-1/2\rangle$  态之间的电子布居又恢复到自旋向上占优的类初始状态,右旋椭圆偏振探测光的饱和再次增强到最大值,对应量子拍的又一峰,这样就完成了一个量子拍周期.然而,完成一个进动周期后的饱和增强峰比本进动周期开始时的饱和增强峰低,是由于电子自旋的退偏振和退相干及电子的复合三种效应引起的.所以,椭圆偏振光吸收量子拍的衰减过程反映了电子自旋退偏振与退相干动力学,因而,这种椭圆偏振光吸收量子拍光谱和法拉第旋转量子拍光谱、发光量子拍光谱一样,是实验观测电子自旋退相干动力学的一种新方法,但这种方法具有实验设备简单、操作容易和适用范围宽广等优点.如图2所示,量子拍频率和幅度均随温度升高而减小,图中虚线显示了量子拍周期的变化,量子拍振荡幅度和总饱和吸收的衰减速率也随温度升高而减慢.所以,图2所示量子拍曲线反映了丰富的电子自旋弛豫动力学.然而,本文重点关注的是自旋量子拍频率,进而获得电子  $g$  因子,而电子自旋退相干动力学将另文专门讨论.

基于上述量子拍起源讨论,量子拍频率应该等于电子自旋的拉莫尔进动频率,即

$$\nu = g_e \mu_B B / h, \quad (1)$$

式中  $g_e$  为电子的 Landé  $g$  因子,  $\mu_B$  为自由电子的磁矩,  $h$  为 Planck 常数,  $B$  为外加磁场.所以,只要从实验量子拍曲线获取量子拍频率  $\nu$ ,就能由方程(1)计算出电子的  $g_e$  因子.

我们实验测量了从 8.1K 到室温约每 10K 变化的一系列量子拍曲线.由于量子拍周期随温度升高增加,而电子自旋相干寿命随温度升高减小,当温度上升到 260K 时,刚好能观察到一个完整周期的量子拍.经傅里叶变换所获得的一系列量子拍曲线得到量子拍频率  $\nu$ ,并由方程(1)计算得到 8.1K 到 260K 温度范围的电子  $g$  因子如图3中实心圆点所示.  $g$  值的负号是人为添加的,因为其它实验已证实 GaAs 半导体材料中  $g$  因子为负值.

图3所示  $g$  因子随温度变化与文献[1,2]中使用发光量子拍光谱获得的  $g$  因子温度依赖非常接近,但两者实验结果均与  $k \cdot p$  理论预测相差甚大,  $k \cdot p$  理论预测一个相反变化趋势的  $g$  因子温度依赖,如图3中点线所示<sup>[1-3]</sup>,表明  $k \cdot p$  理论的不完善性.我们的  $g$  因子温度依赖变化比发光量子拍方法获得的温度依赖变化略快.我们推测这种小差别可

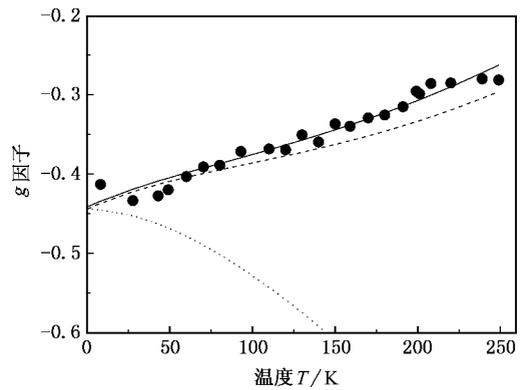


图3 GaAs 中电子  $g$  因子随温度变化. 实心圆点为实验数据点; 实线为(2)式拟合曲线, 点线为  $k \cdot p$  理论预测  $g$  值, 虚线为(2)式预测的导带底的  $g$  值

能是电子过超能量不同引起的,因为我们的实验中光子能量固定,但由于 GaAs 带隙随温度升高而减小,结果电子的过超能量随温度增加而增加.而发光量子拍光谱测量的总是在导带底部附近的电子.为了证实我们的推测,我们进一步完成了  $g$  因子的能量依赖实验研究.

图4所示为温度为 8.1K 时,在 6 个不同波长处测得的饱和吸收量子拍信号曲线.可以看到,随着波长的减小或光子能量的增加,也即电子能量增加,量子拍周期增加,如虚线指示.当波长短于 800nm 时,出现吸收增强,并且量子拍反向.这种现象的起因目前尚不完全清楚,正在研究中.

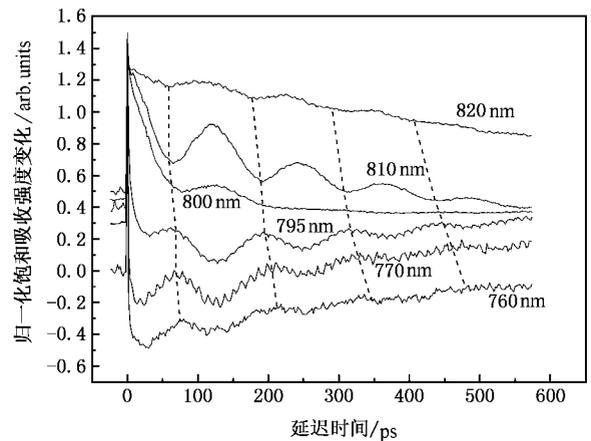


图4 归一化吸收量子拍的电子能量依赖.其中 770nm, 795nm, 810nm, 820nm 的量子拍曲线的零基线被上移.  $T = 8.1K$

我们完成了从 750nm 到 825nm 波长范围每隔 5nm 或 10nm 间隔的吸收量子拍实验测量,并傅里叶分析这些吸收量子拍曲线,获取量子拍频率.由方程

(1) 计算得到的  $g$  因子的能量依赖关系如图 5 中实心圆点所示. 显然,  $g$  因子随光子能量, 进而电子能量增加而增加. 这证实了我们上面的推测. 我们的  $g$  因子随温度变化比文献 [1, 2] 中报道的  $g$  因子温度依赖变化略快是由于电子过超能量引起的. 然而, 我们实验获得的  $g$  因子能量依赖变化远慢于理论预测的  $g$  因子能量依赖趋势<sup>[16]</sup>. 文献 [16] 中给出了 GaAs 的电子  $g$  因子的线性能量依赖公式  $g(E) = -0.44 + 6.3(E - E_0)$ , 如图 5 中点线所示. 这再次表明  $g$  因子计算的理论体系的不完善性.

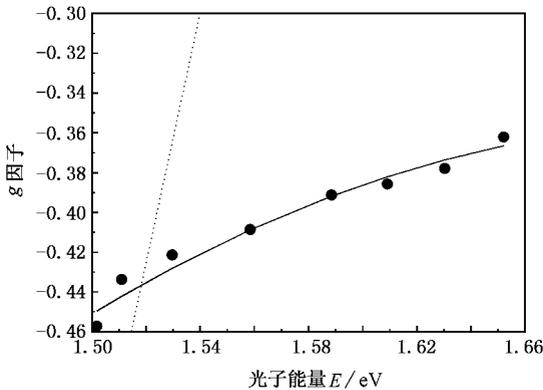


图 5 GaAs 中电子  $g$  因子随光子能量变化. 实心圆点为实验数据点, 实线为 (2) 式拟合曲线, 点线为理论预测的  $g$  因子能量依赖变化

由于目前的理论不能正确描述我们的实验获得的电子  $g$  因子的温度和能量依赖变化. 本文将基于对实验结果的拟合, 发展一个经验公式来描述  $g$  因子的温度和能量依赖变化. 因为  $g$  因子是温度和能量的二元函数, 而任何二元函数总可以按 Taylor 级数展开, 并取至二级近似. 用此二级 Taylor 展开近似式拟合图 3 和 5 中的实验数据获得展开式中的待定系数, 最终获得  $g$  因子的温度和能量依赖经验公式

$$g(E, T) = g_c^*(T) + 0.00093 T$$

$$+ 4.4189 \times 10^{-6} T^2 + 1.16153 \left( \frac{E - E_0}{E_0} \right) - 4.08582 \left( \frac{E - E_0}{E_0} \right)^2, \quad (2)$$

式中  $g_c^*(T)$  为  $k \cdot p$  理论预测的 GaAs 导带底的电子  $g$  因子<sup>[1-3]</sup>,  $E$  为光子能量,  $E_0$  为 GaAs 带隙能量. 方程 (2) 对  $g$  因子的温度和能量依赖的实验结果拟合如图 3 和图 5 中实线所示.

为了检验经验公式 (2) 的可靠性和精确度, 我们用它预测 GaAs 导带底  $g$  因子随温度的变化. 在 (2) 式中令  $E - E_0 = kT$  ( $k$  为波尔兹曼常数), 则预测的 GaAs 导带底的电子  $g$  因子的温度依赖如图 3 中虚线所示, 与文献 [1, 2] 中报道的导带底的电子  $g$  因子的温度依赖实验结果符合得非常好. 表明经验公式 (2) 具有高的可靠性和精确度.

## 4. 结 论

观察到椭圆偏振光饱和吸收量子拍, 这种量子拍起源于电子自旋的拉莫尔进动. 与其他量子拍光谱比较, 椭圆偏振光吸收量子拍光谱具有实验设备简单、操作容易和适用范围广等优点, 在电子自旋相干弛豫动力学研究方面具有广阔应用前景. 基于量子拍频率度量, 实验获得了本征 GaAs 的电子  $g$  因子的温度和能量依赖数据, 其中能量依赖数据是首次报道. 实验结果与目前的理论预测的 GaAs 电子  $g$  因子的温度和能量依赖数据相差甚远, 表明理论计算模型的不完善性. 基于实验数据拟合, 发展了一个经验公式来描述电子  $g$  因子的温度和能量依赖变化. 该经验公式预测的导带底的电子  $g$  因子的温度依赖与已报道的实验结果相符合得非常好. 表明了该经验公式的高的可靠性和精确度.

- [1] Oestreich M, Hallstein S, Rühle W W 1996 *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **2** 747
- [2] Oestreich M, Rühle W W 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 2315
- [3] Claudine H, Claude W 1977 *Phys. Rev. B* **15** 823
- [4] Van Kesteren H W, Cosman E C, Greidanus F J A M, Dawson P, Moore K J, Foxon CT 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 129
- [5] Yan M X, Wu S X, Xu H Y, Wu E, Mao J C, Lin X Y, Zhang G H, Liu J 1998 *Acta Phys. Sin.* **37** 847 (in Chinese) [晏懋洵, 吴书祥, 许惠英, 吴恩, 毛晋昌, 林旋英, 张光华, 刘嘉 1988

物理学报 **37** 847]

- [6] Snelling M J, Flinn G P, Plaut A S, Harley R T, Tropper A C, Eccleston R, Phillips C C 1991 *Phys. Rev. B* **44** 11345
- [7] Sapega V F, Cardona M., Ploog K, Ivchenko E L, Mirlin D N 1992 *Phys. Rev. B* **45** 4320
- [8] Heberle A P, Rühle W W, Ploog K 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 3887
- [9] Hannak R M, Oestreich M, Heberle A P, Rühle W W, Köhler K 1995 *Solid State Communication* **93** 313
- [10] Le Jeune P, Robart D, Marie X, Amand T, Brousseau M, Barrau

- J, Kalevich V, Rodichev D 1997 *Semicond. Sci. Technol.* **12** 380
- [ 11 ] Malinowski A, Guerrier D J, Traynor N J, Harley R T 1999 *Phys. Rev. B* **60** 7728
- [ 12 ] Kikkawa J M, Awschalom D D 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4313
- [ 13 ] Bar-Ad S, Bar-Joseph I 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 2491
- [ 14 ] Palinginis P, Wang H L 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 37402
- [ 15 ] Lai T S, Liu L N, Shou Q, Lei L, Lin W Z 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 4040
- [ 16 ] Yang M J, Wagner R J, Shanabrook B V, Waterman J R, Moore W J 1993 *Phys. Rev. B* **47** 6807

## Studies on the temperature and energy dependence of $g$ factor in GaAs by femtosecond laser absorption quantum beats<sup>\*</sup>

Xu Hai-Hong Jiao Zhong-Xing Liu Xiao-Dong Lei Liang Wen Jin-Hui Wang Hui Lin Wei-Zhu Lai Tian-Shu<sup>†</sup>

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

( Received 12 August 2005 ; revised manuscript received 18 October 2005 )

### Abstract

Time-resolved elliptically polarized pump-probe spectroscopy developed by us is used to study spin relaxation dynamics of electrons in an intrinsic GaAs under an external magnetic field. Absorption quantum beats are observed and attributed to Larmor precession of electron spin around the magnetic field. The frequency of this quantum beat is used as a new method to measure electronic  $g$  factor with high accuracy. In this paper, this new method is utilized to investigate the temperature and energy dependence of electronic  $g$  factor in the intrinsic GaAs. It is found that electronic  $g$  factor increases with the temperature and energy of electrons, which is quite different from the dependence predicted by  $k \cdot p$  theory. An empirical formula is given to describe the temperature and energy dependence of  $g$  factor by fitting experimental data.

**Keywords** : elliptically polarized pump-probe spectroscopy, spin quantum beat,  $g$  factor, GaAs

**PACC** : 7847, 7360F, 7820L

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant Nos. 60378006, 10274107 ), the Major Program of the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 60490290 ), the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China ( Grant No. 04009736 ), the Key Guide Program of Bureau of Science and Technology of Guangdong Province, China ( Grant No. 2004B10101006 ), and by the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China ( Grant No. 20050558030 ).

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