

稀磁半导体 (Ga, Mn)As 薄膜激光诱导超快磁化动力学过程拟合方法探究

李杭 张新惠

Analysis of fitting methods for laser-triggered ultrafast magnetization dynamics in diluted magnetic semiconductor (Ga, Mn)As film

Li Hang Zhang Xin-Hui

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 64, 177503 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.177503

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.177503>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphys.ac.cn/CN/Y2015/V64/I17>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

高质量稀磁半导体 (Ga Mn)Sb 单晶薄膜分子束外延生长

Molecular-beam epitaxy of high-quality diluted magnetic semiconductor (Ga Mn)Sb single-crystalline films

物理学报.2015, 64(7): 077501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.077501>

Cu 掺杂 ZnO 磁性能的实验与理论研究

Magnetic properties of the Cu-doped ZnO: experiments and theory

物理学报.2014, 63(15): 157502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.157502>

热退火对 Mn 离子注入非故意掺杂 GaN 微结构、光学及磁学特性的影响

Influences of post-heat treatment on microstructures optical and magnetic properties of unintentionally doped GaN epilayers implanted with Mn ions

物理学报.2014, 63(4): 047501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.047501>

Fe Co 共掺杂 ZnO 薄膜结构及发光特性研究

Crystal structures and optical properties of (Fe Co)-codoped ZnO thin films

物理学报.2013, 62(2): 027501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.027501>

固相反应法制备的  $\text{Co}_x\text{Zn}_{1-x}\text{O}$  磁性能的研究

Magnetic properties of  $\text{Co}_x\text{Zn}_{1-x}\text{O}$  by solid-state reaction

物理学报.2012, 61(15): 157503 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.157503>

# 稀磁半导体 (Ga, Mn)As 薄膜激光诱导超快磁化动力学过程拟合方法探究\*

李杭 张新惠†

(中国科学院半导体研究所超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

(2015年3月25日收到; 2015年5月9日收到修改稿)

本文对稀磁半导体 (Ga, Mn)As 薄膜中超快激光诱导磁化动力学响应信号的不同拟合方法进行了对比分析. 通过 Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程的数值拟合发现, 由于薄膜平面内和平面外磁光响应强度不同, 磁矢量三维进动的叠加可以导致多个频率振动模式的假象. 当使用高于 (Ga, Mn)As 带边的能量激发时, 磁化进动的磁光响应信号中叠加着来自光极化载流子的响应, 此时单纯利用 LLG 方程对薄膜整体磁化动力学过程拟合应谨慎使用. 本工作为正确分析和理解脉冲激光对 (Ga, Mn)As 铁磁性的超快调控提供了拟合方法上的指导.

**关键词:** 磁化动力学, (Ga, Mn)As, 时间分辨磁光克尔效应

**PACS:** 75.50.Pp, 67.30.hj, 78.20.Mg, 72.25.Rb

**DOI:** 10.7498/aps.64.177503

## 1 引言

III-V 族铁磁半导体因兼具半导体和铁磁金属的性质, 作为未来磁存储和信息处理的新一代材料, 在过去十几年中受到了极大的关注<sup>[1-3]</sup>. 尽管目前 (Ga, Mn)As 薄膜的居里温度还未达到室温, 但稀磁性半导体材料的本征铁磁性使其成为人们探究脉冲激光与稀磁性半导体材料电子与自旋体系相互作用新现象与新物理的理想材料. (Ga, Mn)As 的磁学性质极大地依赖于生长制备工艺、Mn 掺杂浓度与有效空穴浓度, 所以自 1996 年被成功生长以来 (Ga, Mn)As 就一直作为典型材料在有关其磁性的光场、电场、磁场调控及其器件研究方面受到广泛研究<sup>[4-7]</sup>. 其中, 特别是对于脉冲激光诱导的磁化动力学过程的研究从电子能带、激光热效应和非热效应机理调控等角度极大地丰富了稀磁半导体 (Ga, Mn)As 的基本物性与其潜在磁电子器件应用的研究<sup>[8-11]</sup>. 如自旋转移矩<sup>[12]</sup>、自旋-轨

道矩<sup>[13]</sup>、磁晶各向异性调控等<sup>[14-19]</sup>脉冲激光诱导的超快磁化动力学过程调控研究使人们在皮秒乃至亚皮秒时间尺度对 (Ga, Mn)As 中载流子调控铁磁性的认识不断深入, 这为基于 (Ga, Mn)As 材料的半导体自旋电子器件的开发和研制奠定了基础.

在 (Ga, Mn)As 中, 基于 Zener 平均场模型的理论研究表明局域 Mn 离子的自旋与空穴自旋通过 p-d 反铁磁交换作用导致 Mn 离子的铁磁有序. Mn 离子作为受主提供巡游载流子, 这些载流子反过来又影响材料的铁磁性质<sup>[20]</sup>. 这种特点使得 (Ga, Mn)As 中超快激光诱导的磁化动力学过程与一般铁磁金属不同. 光生载流子通过 p-d 交换作用增强 Mn-Mn 之间的交换耦合, 这种耦合效应的增强会导致 (Ga, Mn)As 的光吸收系数强烈依赖于其磁矢量, 从而导致 (Ga, Mn)As 较其他铁磁金属具有非常强的磁线二向色性 (magnetic linear dichroism, MLD) 效应<sup>[21]</sup>. 实际上, 在通常的实验设备几何配置下, 脉冲线偏振光诱导的 (Ga, Mn)As 磁光信

\* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2011CB922200) 和国家自然科学基金 (批准号: 10974195) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [xinhuiz@semi.ac.cn](mailto:xinhuiz@semi.ac.cn)

号响应来自于MLD和极化克尔旋转(polar Kerr effect, PKE)效应的叠加,这使得(Ga, Mn)As中激光诱导的磁化进动响应同时包含着平面内和平面外磁矢量的动力学演化信息;且不同实验几何配置下,平面内和平面外分量的磁光克尔响应强度不同<sup>[22,23]</sup>.此外,(Ga, Mn)As中不同调控手段(如改变光激发波长与功率密度、不同温度与外磁场)下,由于主导的磁化动力学调控机理不同,相应的磁光响应也不同.例如,磁矢量在激光热效应或非热效应机理主导下的磁化进动具有明显不同的光激发功率依赖.除了宏观磁矩进动,(Ga, Mn)As中的非局域载流子和衬底GaAs中的载流子也可能在光激发下对磁光信号产生重要的影响,并且这种影响伴随着磁化进动的整个过程.因此,不同调控机理和各种光激发响应信号共同混合在(Ga, Mn)As集体自旋动力学响应中.这些磁光信号响应有些与磁有序并不直接相关,甚至有些信号带有一定程度的假象.因此,在激光诱导(Ga, Mn)As薄膜材料的集体自旋超快激发动力学研究中,如何有效区分来自不同激发过程的磁光信号,并根据(Ga, Mn)As的本征物理特性合理地拟合磁光克尔响应信号从而获得其真实动力学演化信息,是进一步研究探索(Ga, Mn)As中超快调控铁磁性及其物理机理的重要前提.

目前常用的针对稀磁半导体(Ga, Mn)As材料中超快激光诱导的磁化进动信号的拟合方法主要包括随时间指数衰减的谐和函数、叠加指数衰减背底的衰减谐和函数、Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程以及结合MLD和PKE效应的LLG磁化进动拟合等.这些方法都在不同侧面反映了(Ga, Mn)As中宏观磁化进动演化信息,但它们具有不同的拟合优缺点.根据需关注的磁化动力学物理问题的不同,拟合方法也应该慎重选取.如何充分利用不同拟合方法的优势,避免因拟合方法选择不当导致获取磁化进动信息错误,是本文所要讨论的重点.

## 2 实验装置与样品

我们的实验样品均以GaAs(001)为衬底,利用低温分子束外延方法生长.样品是Mn掺杂名义浓度为3.6%、生长厚度约为100 nm的(Ga, Mn)As薄膜.(Ga, Mn)As薄膜经过低温退火处理,以减小间隙Mn的影响.样品居里温度为79 K,其中的空

穴浓度约为 $2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ .我们采用时间分辨的抽运-探测磁光克尔技术研究(Ga, Mn)As薄膜的磁化动力学过程.实验中所用到的美国相干公司掺钛蓝宝石激光器重复频率为80 MHz,激光脉冲宽度为150 fs.实验配置上,抽运光近垂直激发样品,而探测光与样品法线的夹角为 $30^\circ$ .抽运光的偏振度可以由1/4波片调为左旋圆偏振光或右旋圆偏振光,或者通过1/2波片调为线偏振光;探测光采用线偏极化.探测光经样品表面反射后,其磁光信号被平衡光桥硅探测器接收,经锁相放大器记录实时响应.样品放置在Janis氦气闭循环冷头中,温度在7.5 K至室温连续可调.

## 3 结果与讨论

常用的超快激光诱导的磁化动力学信号拟合方法很多,但根据其所用到的基本拟合函数,大体可以分为两类:

1) 通过随时间指数衰减的谐和函数对超快激光诱导的磁化动力学原始响应拟合.其典型拟合函数具有余弦函数叠加指数衰减函数的形式,如 $A \cos(\omega t + \varphi) \exp(-t/\tau_D)$ ,其中 $A$ 表示进动幅值, $\omega$ 表示进动角频率, $t$ 表示时间, $\varphi$ 表示进动初始相位, $\tau_D$ 表示进动的衰减时间.以此类方法为基础的拟合可以有多种演变.例如,可以使用叠加指数背底的衰减谐和函数拟合磁光信号

$$MO = \sum_i A \cos(\omega_i t + \varphi_i) \exp(-t/\tau_{D_i}) + [1 - \exp(-t/\tau_r)] \exp(-t/\tau_d), \quad (1)$$

其中, $i$ 为求和指标, $\tau_r$ 和 $\tau_d$ 分别为背底弛豫信号上升和下降时间常数<sup>[24,25]</sup>.

2) 建立在LLG方程基础上的对磁矢量在瞬态有效场作用下的时间演化动力学拟合.其典型函数具有 $-\gamma\mu_0 \cdot \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}$ 形式,其中 $\gamma$ 为磁回旋比, $\mu_0$ 表示真空磁导率, $\mathbf{M}$ 为磁矢量, $\mathbf{H}_{\text{eff}}$ 表示有效磁场.根据参考文献<sup>[3]</sup>,具有磁阻尼过程的磁化进动LLG拟合方程具有如下形式:

$$d\mathbf{M}/dt = -\gamma\mu_0 \cdot \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha/M_s \cdot (\mathbf{M} \times d\mathbf{M}/dt), \quad (2)$$

其中 $\alpha$ 是磁阻尼系数, $M_s$ 是饱和磁化强度,上式等号右边第一项描述了磁化进动行为,第二项描述了磁阻尼过程.

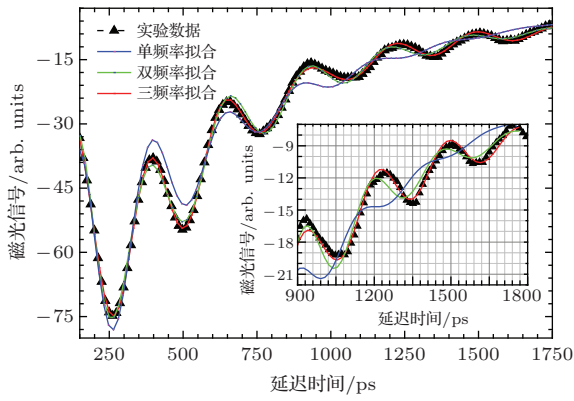


图1 (网刊彩色) 不加外磁场且温度为8 K时, 利用775 nm激光诱导的(Ga, Mn)As薄膜磁化进动磁光响应和拟合结果(插图为时间延迟900—1800 ps范围内局部放大的拟合结果对比)

Fig. 1. (color online) Temporal profile and fitting results of magnetization precession response measured at 8 K with optical excitation of 775 nm without external magnetic field applied. Inset shows the zoom-in results.

在低温8 K下, 不加外磁场时, 利用波长为775 nm 功率密度为 $2.3 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 的脉冲线偏振激光诱导(Ga, Mn)As薄膜中磁化进动的典型磁光响应如图1所示. 首先, 我们使用第一类拟合方法对时间分辨磁光响应数据进行拟合. 图1中蓝色曲线是使用单一频率进行拟合的结果. 容易看出, 用方程(1)拟合只能近似拟合实验数据, 在时间延迟850 ps后磁化进动无法准确拟合, 这表明单一频率并不能达到最佳拟合. 为了更好地拟合数据, 我们根据第一类拟合方法使用多进动频率进行拟合. 图1中绿色和红色曲线分别是利用方程(1)衍生的包含两个和三个不同频率的拟合结果. 可以看到, 使用两个进动频率的拟合结果在时间延迟1200 ps后仍有较大拟合误差, 而使用三个进动频率才能更好地拟合实验测量磁化进动的整个过程. 实验测试中我们没有施加外磁场, 并且采用线偏振光进行激发, 因而不存在极化电子激发所产生的载流子拉莫尔进动. 根据文献[3]的总结, (Ga, Mn)As薄膜在脉冲线偏振飞秒激光的激发下, 聚焦光斑范围内局域晶格温度和载流子浓度会瞬间升高, (Ga, Mn)As磁晶各向异性场受到瞬态调控, 这会导致磁矩矢量偏离原平衡位置从而引发磁化进动. 这种激光诱导的Mn自旋集体进动模式取决于磁有效场. (Ga, Mn)As中磁有效场主要包括磁晶各向异性场、p-d交换场以及外磁场. 由于p-d交换耦合场较弱, 当不加外磁场时, 磁有效场的变化主要取决于磁晶各向异性场的调制变化. 而从拟合结果看, 所测量的(Ga,

Mn)As磁化进动在均匀进动主导的Kittle模基础上, 似乎还存在其他频率的磁振子模式.

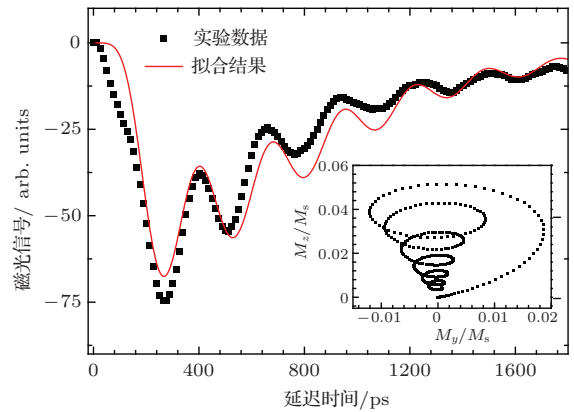


图2 利用LLG方程拟合775 nm激光诱导的磁化进动磁光响应信号(插图为LLG方程数值拟合得到的y-z平面内磁矢量进动轨迹)

Fig. 2. Magnetization precession excited by the linearly-polarized light of 775 nm. The red solid line is the fitting result based on LLG equation. Inset shows the precessional motion of magnetization in  $y-z$  plane.

为此, 我们进一步采用第二类基于LLG方程的数值拟合方法分析图1所示的磁化进动行为, 对比分析实际磁化进动是具有单一频率的进动模式(即均匀进动)还是确实存在多个进动模式? 如前所述, 由于(Ga, Mn)As中存在很强的MLD效应, 其磁光响应对探测光偏振方向与磁矢量的夹角非常敏感, 第一类拟合方法没有对此进行考虑, 因此我们在第二类拟合方法中将MLD和PKE两种效应综合考虑进LLG方程进行拟合. 使用第二类拟合方法获得的拟合结果为图2中的红色曲线. 与拟合出多个频率的第一类拟合方法对比, 这种拟合方法只给出具有一个频率的进动模式. 通过优化面内与面外磁光响应系数、磁化弛豫时间、有效场及其动态取向时间演化参数, 结合量子干涉仪(SQUID)和铁磁共振技术(FMR)测量获得的磁性参数如饱和场、磁晶各向异性场等参数, LLG方程的数值拟合结果可以同时得出磁矢量在笛卡尔坐标系下三个分量 $M_x, M_y, M_z$ 随时间的演化, 各个分量的进动情况见图3(a), (b), (c). 当考虑面内和面外的不同磁光响应强度时, 磁矢量各个分量之间的叠加比例将不再是 $M_x : M_y : M_z = 1 : 1 : 1$ , 而变为 $1 : 1 : 10$ (以775 nm波长激发测量结果拟合为例). 因为瞬态磁有效场 $H_0$ 与 $x$ 轴的夹角 $\theta$ 随时间的动态变化伴随着磁矢量进动的整个过程, 如图3(d)所示, 故可以将这个磁有效场在 $x, y, z$ 方向的分量大

小分别设为  $H_0 \cos \theta(t)$ ,  $0$ ,  $H_0 \sin \theta(t)$  [4]. 于是, 当  $\theta$  发生变化时,  $x$ ,  $z$  方向的磁有效场分量也会随之发生变化. 如果将面内磁光响应强度  $I_{\text{MLD}}$  和面外磁光响应强度  $I_{\text{PKE}}$  的不同数值考虑到磁化进动的各分量中, 磁矢量进动的磁光信号响应可以表示为

$$\begin{aligned} \text{MO} = & I_{\text{MLD}}[M_x(t) - M_s]/M_s \\ & + I_{\text{MLD}}M_y(t)/M_s \\ & + I_{\text{PKE}}M_z(t)/M_s. \end{aligned} \quad (3)$$

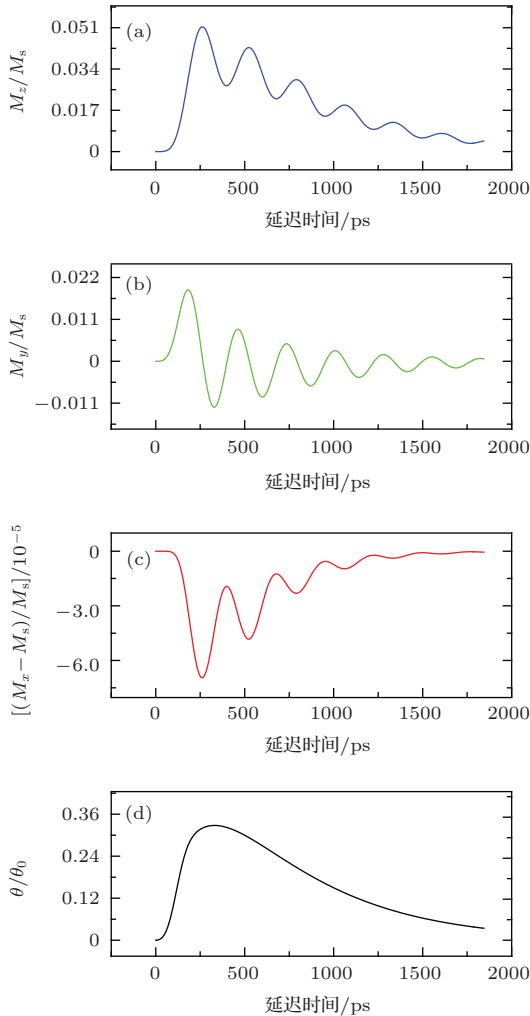


图3 (网刊彩色) (a)–(c) LLG 微分方程数值拟合计算所得磁矢量沿  $x$ ,  $y$ ,  $z$  方向投影的时间演化动力学响应; (d) 磁有效场随时间演化曲线  
 Fig. 3. (color online) (a)–(c) Temporal profiles of the  $x$ -,  $y$ -,  $z$ - projections of magnetization precession, respectively; (d) temporal profile of the tilting angle  $\theta$  of the effective magnetic field  $H_0$ .

根据 (3) 式, 不同的  $I_{\text{MLD}}$  和  $I_{\text{PKE}}$  响应强度可以导致磁化进动各分量产生错位叠加, 使得原来单一频率模式的磁化进动响应信号, 在拟合中产生多个进动模式的假象, 而实际的三维磁矢量进动仍

然是单一频率的均匀进动模式. 通过 LLG 方程拟合, 我们可以得到磁矢量的三维进动轨迹 (见图 4), 它是将  $x$ - $y$ ,  $y$ - $z$ ,  $x$ - $z$  平面进动轨迹矢量叠加的综合结果.

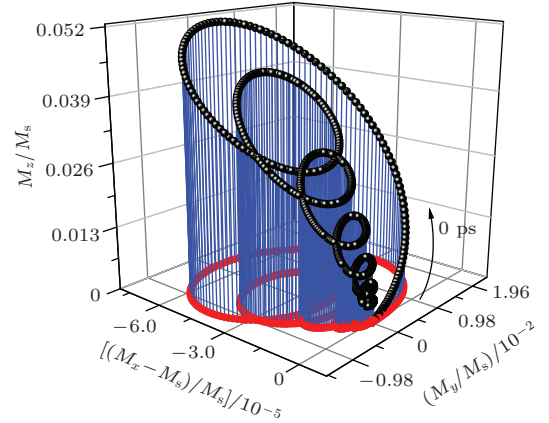


图4 (网刊彩色) LLG 方程数值拟合计算得到的磁矢量三维空间进动轨迹  
 Fig. 4. (color online) Three dimensional trajectory of magnetization precession numerically fitted by LLG equation.

需要指出的是, 图 1 中使用的拟合函数 (1), 在实际数据拟合操作中对于非振荡信号背底的拟合有多种形式的演变, 应根据实验数据曲线的特点选取拟合函数. 第一类拟合方法中的非振荡信号通常被称为脉冲背底信号 (pulse-like background signal), 这种背底信号一般被认为与磁化进动行为无关. 当激光能量低于 (Ga, Mn)As 带边激发时, 因为所有与载流子相关的磁化动力学响应被强烈减弱, 并且光激发导致的电子极化响应信号消失 [25], 这时脉冲背底信号并不显著. 图 5 为用小于 (Ga, Mn)As 带边的 865 nm 波长激光诱导的磁光信号. 可以看到, 在低于带边激发下, 与磁化进动响应无关的背底影响 (如载流子非辐射复合) 不存在, 因而可以使用第二种基于 LLG 微分方程的拟合方法对实验数据进行拟合, 这种拟合可以直接体现集体自旋进动过程, 而不会涉及载流子弛豫等效应. 通过这种拟合可以获得动态有效磁场相对于  $x$  轴角度  $\theta$  的变化, 可以反映磁矢量准平衡位置的倾斜和动态取向的变化. 需要注意的是, 这种拟合虽然可以直观地分析集体磁化进动, 但由于在高于 (Ga, Mn)As 带边激发的情况下整个动力学信号伴随着载流子的复合过程, 载流子所携带的重要信息在第二类拟合中不能被充分体现.

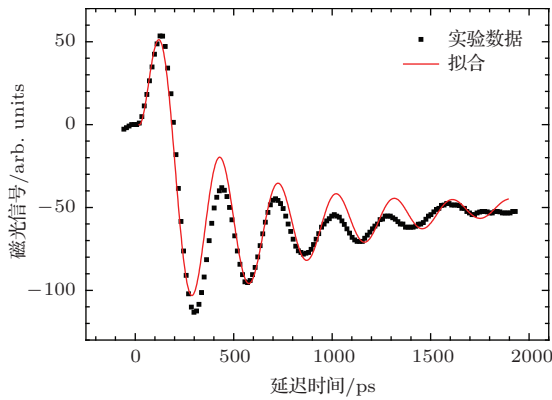


图5 温度 8 K, 不加外磁场时, 利用 865 nm 激光诱导的磁化进动磁光响应和 LLG 方程拟合结果

Fig. 5. Magnetization precession in (Ga, Mn)As excited by the linearly-polarized light at 865 nm and 8 K. The red solid line is the fitting result based on LLG equation.

通常, 高于 (Ga, Mn)As 带边激发的磁化动力学磁光响应信号中伴随有较强的脉冲背底信号, 且这些背底信号并不完全来自于磁有效场的偏转. 例如, 在高于 (Ga, Mn)As 带边的 785 nm 线偏光激发下, 从 8 K 到 80 K 的变温测试中, 呈指数衰减的背底信号一直存在, 甚至在远超过居里温度的 120 K 时依然很明显. 另外, 在平面内施加外磁场并利用左旋和右旋偏振光分别激发样品时, 磁光克尔信号表现出了明显的极化依赖响应, 见图 6. 根据拟合获得的进动频率与外磁场的依赖关系, 我们得到有效  $g$  因子为 0.44, 即为 GaAs 电子有效  $g$  因子, 因此可以确定这种极化依赖的进动响应来自极化电子的拉莫尔进动. 由于 785 nm 波长的激光可以穿透 (Ga, Mn)As 层到达 GaAs 衬底层, 这种极化依赖的信号响应可能来自于 (Ga, Mn)As 也可能来自于 GaAs 层的极化电子 (激光穿透深度估算约为 0.6—1.0  $\mu\text{m}$ ). 除了低温下高于 (Ga, Mn)As 带边激发的磁光响应中存在与磁化进动无关的载流子响应外, 超快激光诱导的磁光信号还可能受到其他因素的影响. 低温外延生长的 (Ga, Mn)As 中大量存在的  $\text{As}_{\text{Ga}}$  缺陷和杂质形成的中间带隙都会对电子俘获时间产生较大影响 [26], 因而在有外磁场或变温情况下对光激发诱导的 (Ga, Mn)As 磁化进动的讨论应该谨慎使用第二类拟合方法, 避免使用单一拟合方式导致对某些物理过程的忽视.

第一类拟合方法拟合的是整体的磁光动力学响应, 其优点是在考虑光激发载流子动力学过程的同时, 拟合集体磁化动力学过程. 但是由于这种拟合中没有定量区分磁光信号中 MLD 和 PKE 分量

的响应, 综合拟合结果容易造成多个进动模式的假象. 通过第二类拟合方法得到的是在拟合出磁矢量三维各分量进动情况后, 再按平面内与平面外的不同磁光响应强度比例叠加的磁化进动结果. 尽管第二类拟合方法在 LLG 方程基础上直接地体现了磁化进动的动态过程, 但动态磁矢量的初始方向和初始演化方向是通过参数最优化拟合给出的. 在激光激发样品前, 易轴的方向由样品的磁晶各向异性场决定, 虽然可以通过超导量子干涉仪确定出磁矢量大致初始位置, 但较难精确地确定磁矢量的初始取向. 因此, 使用第二类拟合方法最优化参数拟合后的结果不能精准地描述磁化进动的初始状态, 而且这种方法也没有考虑光激发载流子可能参与的动力学过程. 综上所述, 两类拟合方法应结合实验测量配置和实际的研究对象联合使用, 避免单一拟合方法带来的弊端.

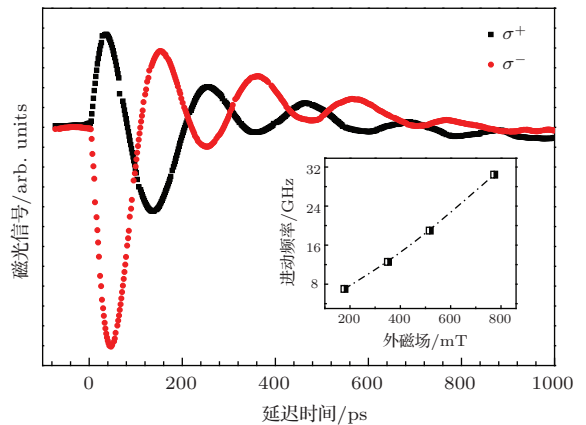


图6 (网刊彩色) 在平面内 773 mT 外磁场 (沿  $[1\bar{1}0]$  晶向) 下, 8 K 温度时分别利用 785 nm 的左圆和右圆偏振光激发 (Ga, Mn)As 薄膜所获得的磁光响应信号 (插图为拟合获得的进动频率随外磁场的变化)

Fig. 6. (color online) Time-resolved MOKE response obtained by the left- and right-polarized light excitations at 785 nm at 8 K under the external magnetic field of 773 mT applied along  $[1\bar{1}0]$  axis. The inset shows the precession frequency as a function of the external magnetic field.

## 4 结 论

(Ga, Mn)As 薄膜中超快激光诱导的自旋激发即融合了铁磁薄膜和半导体材料中的一些共性, 又具有其独特的物理性质和操控手段. 本文针对分子束外延 (Ga, Mn)As 薄膜中激光诱导的超快磁化动力学过程的磁光响应信号拟合方法进行了讨论, 对比了不同拟合方法的优缺点, 提出了根据实际情况

有效选取拟合函数的方法. 值得注意的是, 通过时间分辨磁光克尔效应测量得到的薄膜宏观磁化动力学响应包含有面内和面外磁光响应的综合信息. 其中, 由于 (Ga, Mn)As 薄膜具有很强的面内磁光响应, 使得在以指数衰减的谐和函数为基础的动力学信号拟合中可能出现多个频率的进动模式. 当实验测量在没有外磁场且在低于带边能量的激发条件下, 这种多频率进动模式基本可以判断为拟合中出现的假象. 通过与 LLG 方程数值拟合的微分解进行对比, 这种多模式假象问题可以予以排除. 而当实验测量在高于带边能量下激发时, 光生极化载流子会产生较强的脉冲背底信号, 并且来自光激发载流子的响应对外磁场具有较强的依赖, 这使得通过 LLG 方程很难对整体的磁光克尔响应进行拟合. 另外, 在精确进行 LLG 方程数值拟合计算时, 需要注意通过稳态磁光测量确定 MLD 和 PKE 的相对贡献. 选择使用适当的拟合方法, 可以为深入分析和理解 (Ga, Mn)As 薄膜中激光诱导磁化动力学过程提供参考, 有助于正确理解超快光场调控铁磁参量的物理机理, 为以稀磁半导体材料为基础的新型自旋电子器件研制奠定基础.

衷心感谢日本东京工业大学 Hiro Munekata 教授小组无偿提供他们对 (Ga, Mn)As 材料开发的 LLG 方程拟合程序并对程序进行了培训, 这为我们进一步正确拟合和分析数据提供了帮助. 同时, 感谢美国圣母大学物理系 Xinyu Liu 与 Jacek K. Furdyna 教授提供高质量 (Ga, Mn)As 样品.

## 参考文献

- [1] Dietl T, Awschalom D D, Kaminska M, Ohno H 2008 *Spintronics* (Elsevier: Amsterdam) p 90–128
- [2] Dietl T 2010 *Nat. Mater.* **9** 965
- [3] Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 2731
- [4] Hashimoto Y, Kobayashi S, Munekata H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 067202
- [5] Ji C J, Zhang C Q, Zhao G, Wang W J, Sun G, Yuan H M, Han Q F 2011 *Chin. Phys. L* **28** 097101
- [6] Liu X, Lim W L, Dobrowolska M, Furdyna J K, Wojtowicz T 2005 *Phys. Rev. B* **71** 035307
- [7] Luo X D, Ji C J, Wang Y Q, Wang J N 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5277 (in Chinese) [罗向东, 姬长建, 王玉琦, 王建农 2008 物理学报 **57** 5277]
- [8] Wang D M, Ren Y H, Liu X, Furdyna J K, Grimsditch M, Merlin R 2007 *Phys. Rev. B* **75** 233308
- [9] Yu Z, Li X, Long X, Cheng X W, Liu Y, Cao C B 2009 *Chin. Phys. B* **18** 03040
- [10] Liu X D, Wang W Z, Gao R X, Zhao J H, Wen J H, Lin W Z, Lai T S 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3857 (in Chinese) [刘晓东, 王伟竹, 高瑞鑫, 赵建华, 文锦辉, 林位株, 赖天树 2008 物理学报 **57** 3857]
- [11] Hashimoto Y, Munekata H 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 202506
- [12] Němec P, Rozkotová E, Tesařová N, Trojánek F, De Ranieri E, Olejník K, Zemen J, Novák V, Cukr M, Malý P, Jungwirth T 2012 *Nat. Phys.* **8** 411
- [13] Tesařová N, Němec P, Rozkotová E, Zemen J, Janda T, Butkovičová D, Trojánek F, Olejník K, Novák V, Malý P, Jungwirth T 2013 *Nat. Photon.* **7** 492
- [14] Oiwa A, Takechi H, Munekata H 2005 *J. Supercond. Nov. Magn.* **18** 9
- [15] Kobayashi S, Suda K, Aoyama J, Nakahara D, Munekata H 2010 *IEEE Trans. Magn.* **46** 2470
- [16] Takechi H, Oiwa A, Nomura K, Kondo T, Munekata H 2006 *Phys. Status Solidi.* **3** 4267
- [17] Wang J, Cotoros I, Dani K M, Liu X, Furdyna J K, Chemla D S 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 217401
- [18] Qi J, Xu Y, Steigerwald A, Liu X, Furdyna J K, Perakis I E, Tolk N H 2009 *Phys. Rev. B* **79** 085304
- [19] Qi J, Xu Y, Tolk N H, Liu X, Furdyna J K, Perakis I E 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 112506
- [20] Zemen J, Kučera J, Olejník K, Jungwirth T 2009 *Phys. Rev. B* **80** 155203
- [21] Kimel A V, Astakhov G V, Kirilyuk A, Schott G M, Karczewski G, Ossau W, Schmidt G, Molenkamp L W, Rasing T 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 227203
- [22] Tesařová N, Němec P, Rozkotová E, Šubrt J, Reichlová H, Butkovičová D, Trojánek F, Malý P, Novák V, Jungwirth T 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 102403
- [23] Tesařová N, Šubrt J, Malý P, Němec P, Ellis C T, Mukherjee A, Cerne J 2012 *Rev. Sci. Instrum.* **83** 123108
- [24] Rozkotová E, Němec P, Sprinzl D, Horodyská P, Trojánek F, Malý P, Novák V, Olejník K, Cukr M, Jungwirth T 2008 *IEEE Tran. Magn.* **44** 2674
- [25] Rozkotová E, Němec P, Horodyská P, Sprinzl D, Trojánek F, Malý P, Novák V, Olejník K, Cukr M, Jungwirth T 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 122507
- [26] De Boer T, Gamouras A, March S, Novák V, Hall K C 2012 *Phys. Rev. B* **85** 033202

# Analysis of fitting methods for laser-triggered ultrafast magnetization dynamics in diluted magnetic semiconductor (Ga, Mn)As film\*

Li Hang Zhang Xin-Hui<sup>†</sup>

(State Key Laboratory of Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

( Received 25 March 2015; revised manuscript received 9 May 2015 )

## Abstract

Laser-triggered magnetization dynamics for diluted magnetic semiconductor (Ga, Mn)As has drawn great attention in recent years, aiming at studying the ultrafast manipulation of collective spin excitations towards spintronic information processing. In this work, different fitting methods for time-resolved magneto-optical Kerr effect (TR-MOKE) study of the laser-triggered magnetization dynamics in a diluted magnetic semiconductor (Ga, Mn)As are analyzed and compared. It is known that the exponentially damped cosine harmonic function and the numerical simulation based on Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) equation are usually applied to fit the laser-induced magnetization dynamics from TR-MOKE measurements. Under the specified experimental conditions, it is sometimes hard to fit the TR-MOKE response well with single-mode uniform precession by using the exponentially damped cosine harmonic function. Although the fitting with multiple precession frequencies may usually show much better fitting results, the numerical simulation based on LLG equation reveals that the multi-frequency precessional modes are caused by the superposition of three-dimensional trajectories of magnetization precession with different contributions from the in-plane and out-of-plane magneto-optical response in (Ga, Mn)As. Thus, the multi-frequency precessional modes obtained by adopting the fitting method with exponentially damped cosine harmonic function could be the fake ones. Meanwhile, it is important to note that though the LLG equation can be used to fit the macroscopic magnetization precession well with single frequency, the contribution of pulse-like background response from photo-generated polarized carriers at the above-bandgap excitation is strongly superimposed on the magnetization precession response, and the pulse-like background response cannot be described by LLG equation. Thus one should be cautious of applying LLG equation only to fit the entire TR-MOKE signal, especially when the excitation energy is above the band gap of (Ga, Mn)As. One may combine both fitting methods, namely, fitting with the exponentially damped cosine harmonic function and the LLG simulation by considering both the in-plane and out-of-plane magneto-optical response of (Ga, Mn)As film in order to properly fit the laser-triggered magnetization dynamic response from TR-MOKE measurements. The proper handling of fitting methods helps to extract the dynamic magnetic parameters correctly and to further understand the physical mechanisms for triggering the ultrafast manipulation of collective spin dynamics. This is fundamentally important for developing novel spintronics based on diluted magnetic semiconductor (Ga, Mn)As.

**Keywords:** magnetization dynamics, (Ga, Mn)As, time-resolved magneto-optical Kerr effect (TR-MOKE)

**PACS:** 75.50.Pp, 67.30.hj, 78.20.Mg, 72.25.Rb

**DOI:** 10.7498/aps.64.177503

\* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2011CB922200), and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10974195).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [xinhuiz@semi.ac.cn](mailto:xinhuiz@semi.ac.cn)