

# GaAs 中的飞秒自由感应衰减\*

李 青 罗 琦 丘志仁 李伟良 余向阳 周建英

(中山大学超快速激光光谱学国家重点实验室, 广州 510275)

**摘 要** 用双光束诱导半导体 GaAs 的激子相干态, 记录液氮温度样品的光电导信号随双脉冲之间延时的变化。实验与理论分析结果表明: 对于均匀增宽的二能级体系, 这种测量方法可以直接反映相干态的自由感应衰减。求解均匀增宽二能级体系的密度矩阵方程, 拟合实验结果得到载流子相干态的退相时间  $T_2 = 115$  fs。

**关键词** 自由感应衰减, 光电导, 相干态。

## 1 引 言

近年来, 相干瞬态光学方法常常被用来探测系统的动力学过程, 如测量自由感应衰减<sup>[1]</sup>、四波混频法<sup>[2]</sup>、测量光子回波<sup>[3]</sup>以获得退相时间, 用泵浦-探测方法测量激发态的寿命<sup>[4]</sup>等。飞秒激光脉冲的出现为测量记录上述相干瞬态光学过程提供了必要的光源条件。但对于出现在飞秒尺度的相干辐射, 探测器不能直接测量到时间分辨的感应极化强度, 因此, 寻求间接测量飞秒相干辐射的方法是一个重要的研究课题。

本工作用近红外的飞秒双光束诱导半导体 GaAs 的激子相干态, 记录液氮温区下样品光电导信号随双脉冲之间延时的变化。实验和理论分析结果可以表明, 对于均匀增宽的二能级体系, 这种测量方法可以直接反映相干态的自由感应衰减。定性地说, 这是一种相关的测量方法, 当样品相干态的弛豫时间远短于脉冲的宽度时, 样品仅起到光电探测器的作用, 因而这种测量将给出脉冲的自相关曲线。但是当样品相干态的弛豫时间长于脉冲的宽度时, 这种测量实际上会给出相干态的自相关函数。与其它测量相干态退相过程的方法相比, 这种方法无论是原理上还是实验上都具有明显的优点。1995 年 Planken 等人用类似的方法研究了 Si·GaAs 中的浅施主掺杂能级跃迁的自由感应衰减<sup>[5]</sup>。他们采用脉宽为 3 ps 的红外自由电子激光脉冲, 分别探测共振和非共振两种条件下 Si·GaAs 的  $1s-2p^+$  和  $1s-[210]$  硅浅施主跃迁的光电导的响应和延时之间的关系。用二能级系统作为 Si 施主跃迁的模型, 解密度矩阵方程, 当退相时间  $T_2$  分别取 18 ps 和 5 ps 时, 可得到和  $1s-2p^+$  和  $1s-[210]$  跃迁实验结果符合得很好的理论曲线。但是对于凝聚态中的飞秒相干过程必须用飞秒激光脉冲来研究。

\* 本工作由攀登计划预研项目“强场物理与飞秒超快过程”、国家自然科学基金、国家教育部博士点基金和广东省自然科学基金资助。

收稿日期: 1998-09-07; 收到修改稿日期: 1998-11-16

## 2 实验装置和原理

实验装置采取迈克尔逊干涉仪的布局(图 1), 光源为 Spetra-Physics 公司的 Ti:Sapphire 自锁模飞秒激光器, 输出波长为 829.5 nm。飞秒激光脉冲序列经一分束镜 B<sub>1</sub> 分成强度相等的两束, 它们分别经过固定反射镜 M<sub>1</sub> 和由步进电机带动的可变延时线的反射镜和 M<sub>2</sub> 后, 再由分束镜 B<sub>2</sub> 结合成共线传播的两束光, 最后经透镜 L 聚焦于样品 GaAs 上。分束片 B<sub>3</sub> 分出少部分光束进探测器 D, 作同时的自相关测量。样品是用分子束外延生长在 AlGaAs 缓冲层上的外延膜, 厚度为 1 μm, 缓冲层 AlGaAs 下面是 GaAs 衬底。电极做在样品的表面, 电极间距为 1 mm。样品加上偏置电压, 置于液氮低温恒温器中。样品和探测器 D 产生的光电信号送入锁相放大器, 然后送入计算机处理。

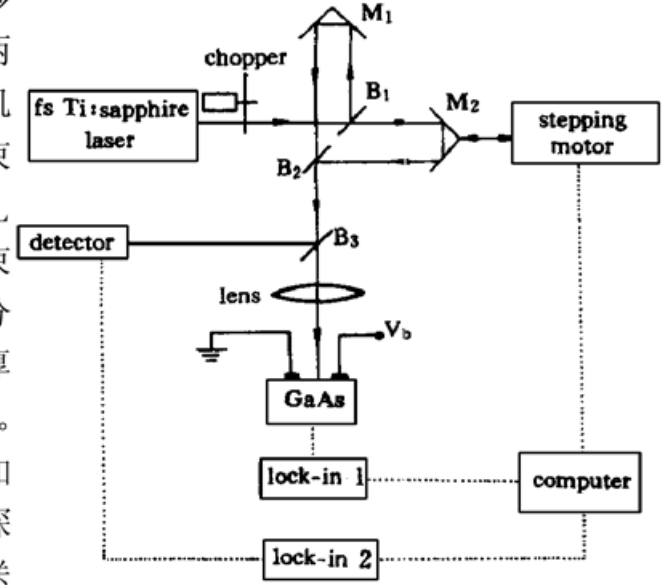


Fig. 1 The experimental setup for exciton coherent state with two-photon induced transitions in GaAs. M<sub>1</sub>, M<sub>2</sub>: routing mirrors, B<sub>1</sub>, B<sub>2</sub>: beam splitters

本实验的测量原理可用求解均匀增宽二能级体系的密度矩阵方程阐明。微扰法求解均匀增宽二能级体系的密度矩阵方程的方法见文献[6]。

在光场作用下, 样品激发态的布居数的变化可表示为密度矩阵对角元的二阶微扰解,

$$\rho_{22}^{(2)}(t) = -i \int_{-\infty}^t \exp\left(-\frac{t-t'}{T_{22}}\right) [V_{21}(t', \mathbf{r}) \rho_{12}^{(1)}(t', \mathbf{r}) - V_{12}(t') \rho_{21}^{(1)}(t')] dt', \quad (1)$$

其中  $\rho_{12}^{(1)}(t) = \rho_{21}^{(1)*}(t) = i \int_{-\infty}^t V_{12}(t', \mathbf{r}) \exp[(i\omega_{21} - \Gamma)(t - t')] dt'$  为密度矩阵非对角元的一

阶微扰解,  $V_{21}(t, \mathbf{r}) = V_{12}(t, \mathbf{r}) = -\frac{1}{h} E(t, \mathbf{r}) \mu_{21}$  为光场与二能级体系偶极相互作用量,  $T_{22}$

为激发态的寿命,  $\Gamma = \frac{1}{T_2}$  为体系的退相率,  $T_2$  为退相时间,  $\omega_{21}$  为体系的跃迁频率。

对于图 1 所示的实验装置, 作用在样品上的电场强度可表示为:

$$E(t, \mathbf{r}) = E(t, z) \cos(\omega t - kz) + E(t - \tau, z) \cos(\omega(t - \tau) - kz), \quad (2)$$

其中  $\tau$  为两束光之间的延时,  $\omega$  为光脉冲的中心频率。

实验上测量的是正比于激发态粒子数的光电导信号随  $\tau$  的变化, 因而测量的信号可表为:

$$S(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \rho_{22}^{(2)}(t, \tau) dt. \quad (3)$$

为了简化计算和突出物理概念, 假定脉冲的时间包络远短于样品的弛豫时间, 这样可用  $\delta$  函数表示脉冲的时间包络, 即

$$E(t, z) = E_0(z) \delta(t). \quad (4)$$

于是

$$\begin{aligned}
 \rho_{22}^{(2)}(t) &= 0 & t < 0, \tau \geq 0; \\
 &= 2 \left| \frac{\mu_{12}}{\hbar} \right|^2 \exp\left(-\frac{t}{T_{22}}\right) [E_0(z) \cos(kz)]^2 & 0 \leq t < \tau, \tau \leq 0; \\
 &= 2 \left| \frac{\mu_{12}}{\hbar} \right|^2 \exp\left(-\frac{t}{T_{22}}\right) [E_0(z) \cos(kz)]^2 + \\
 &\quad 2 \left| \frac{\mu_{12}}{\hbar} \right|^2 \exp\left(-\frac{t-\tau}{T_{22}}\right) [E_0(z) \cos(kz)]^2 + \\
 &\quad 2 \left| \frac{\mu_{12}}{\hbar} \right|^2 \exp\left(-\frac{t-\tau}{T_{22}}\right) [E_0(z) \cos(kz)]^2 \cos(\omega_{21}\tau) \exp(-\Gamma\tau) & t \geq \tau, t \geq 0.
 \end{aligned} \tag{5}$$

将以上结果代入(3)式, 可得

$$S(\tau) \propto 2 \left| \frac{\mu_{12}}{\hbar} \right|^2 [E_0(z) \cos(kz)]^2 T_{22} [2 + \exp(-\Gamma\tau) \cos(\omega_{21}\tau)]. \tag{6}$$

这个结果表明, 当脉冲的宽度远短于样品的弛豫时间时, 以上的双脉冲相关方法的确可以测量均匀增宽二能级体系的退相时间。对于多能级或非均匀增宽体系, 理论上的计算可能要复杂得多, 但其物理本质只是大同小异。这种方法也能给出相干态持续时间的测量。

### 3 实验结果与分析

首先用单束连续光激发样品, 测量当温度为77K、偏压为50V时的光电导谱。实验结果

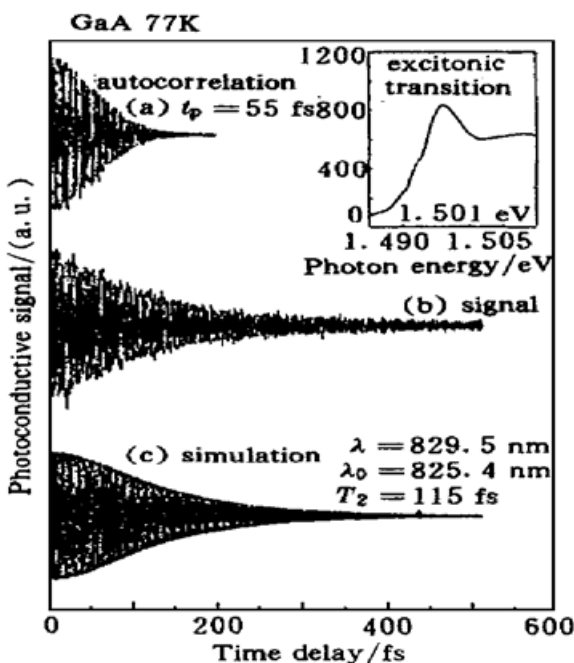


Fig. 2 (a) The first order autocorrelation curve with two pulses induced transition in photodetector, (b) The photoconductivity signal as a function of time delay, (c) The numerical simulation of the photoconductivity signal as a function of time delay using equation (1), (2), (3). Inset is the photoconductivity signal as a function of excitation energy

结果如图 2 插图所示, 与 GaAs 在相同光子能量范围的吸收光谱<sup>[7]</sup>十分相似, 因而可以认为 GaAs 的光电导谱是在 1.507 eV 附近的带间跃迁和在 1.501 eV 附近的激子跃迁的复合贡献。

在双光束的相关测量中, 将激光脉冲中心波长调至激子峰附近, 并把脉宽调至约 55 fs, 记录温度为 77 K、偏压为 50 V 时样品光电导信号随双脉冲之间延时的变化, 结果如图 2(b) 所示, 图 2(a) 为用普通光电探测器同时测量的双脉冲的一阶相关曲线。很明显, 相干激子态的持续时间比光脉冲的相干时间长, 这样就有可能通过理论模拟的方法确定相干激子态的退相时间。图 2(c) 是采用(1)式、(2)式和(3)式的理论模拟, 光场时间包络是脉宽为 55 fs 的高斯函数。激光频率为 1.4937 eV, 激子跃迁频率  $\omega_{21}$  为 1.5012 eV,  $T_2 = 115$  fs。带间跃迁有较宽的带宽, 从而有较短的退相时间, 不会影响长时间的  $T_2$  测量, 本讨论暂忽略了带间跃迁对自由感应衰减的贡献。由于本实验样品的温度在连续激光作用下的不确定性, 可能导致激子峰的位置的不

确定性, 因此会对拟合结果产生一定的影响。Oudar 等人在 15 K 下测得 GaAs 的电子-空穴对的退相时间为 300 fs<sup>[8]</sup>。由于退相时间随着温度的降低而增长, 而本实验是在 77 K 下进行的, 因此所测得的退相时间比 Oudar 等人所测得的退相时间略短一些。因此, 理论和实验结果基本符合。

**结 论** 用双光束诱导半导体 GaAs 的激子相干态, 记录低温下样品光电导信号随双脉冲之间延时的变化。可以证明, 对于均匀增宽的二能级体系, 这种测量方法可以直接反映相干态的自由感应衰减。根据本实验的测量原理可用求解均匀增宽二能级体系的密度矩阵方程拟合得到  $T_2 = 115$  fs 的载流子相干态退相时间。

### 参 考 文 献

- [1] Elsaesser T, Shah J, Rota L *et al.*. Initial thermalization of photoexcited carriers in GaAs studied by femtosecond luminescence spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, **66**(13) : 1757~ 1760
- [2] Becker P C, Fragnito H L, Brito Cruz C H *et al.*. Femtosecond photon echoes from band-to-band transitions in GaAs. *Phys. Rev. Lett.*, 1988, **61**(14) : 1647~ 1649
- [3] Levenson M D. 非线性激光光谱学导论. 北京: 宇航出版社, 1988. 219~ 226
- [4] Worsley R E, Traynor N J, Grevatt T *et al.*. Transient linear birefringence in GaAs quantum wells: Magnetic field dependence of coherent exciton spin dynamics. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, **76**(17) : 3224~ 3227
- [5] Planken P C M, van Son P C, Hovenier J N *et al.*. Far-infrared picosecond time-resolved measurement of the free-induction decay in GaAs:Si. *Phys. Rev. (B)*, 1995, **51**(15) : 9643~ 9647
- [6] Whettet B S, Smirl A L, Boggess T F. Theory of degenerate four-wave mixing in picosecond excitation-probe experiments. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1983, **QE-19**(4) : 680~ 690
- [7] 史密斯 R A. 半导体. 北京: 科学出版社, 1987. 370~ 378
- [8] Oudar J L, Hulin D, Migus A *et al.*. Subpicosecond spectral hole burning due to nonthermalized photoexcited carriers in GaAs. *Phys. Rev. Lett.*, 1985, **55**(19) : 2074~ 2077

## Time-Resolved Femtosecond Free-Induction-Decay in Semiconductor

Li Qing      Luo Qi      Qiu Zhiren      Li Weiliang  
Yu Xiangyang      Zhou Jianying

(State Key Laboratory of Ultrafast Laser Spectroscopy, Zhongshan University, Guangzhou 510275)

(Received 7 September 1998; revised 16 November 1998)

**Abstract** Coherent properties for excitons and for free carriers in intrinsic bulk GaAs are studied with femtosecond free-induction-decay (FID). The GaAs at 77 K is excited at its excitonic energy with dual fs pulses from a Ti:Sapphire laser and the FID is recorded through photocurrent detection. The dephasing rates are determined by comparing the FID with theoretical results for density matrix in homogeneous broadening two-level system.

**Key words** free induction decay, photoconductivity, coherent state.