

УДК 538.615

ФОРМА ЛИНИИ СПИН-ФЛИП КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА В ПОЛУМАГНИТНЫХ ПОЛУПРОВОДНИКАХ

Д. Л. Алов

Проведена экспериментальная проверка теории, предложенной для описания спин-флип комбинационного рассеяния света в полумагнитных полупроводниках. Показано, что для достаточно совершенных кристаллов предсказания теории оказываются справедливыми. Однако в некоторых случаях объяснение экспериментальных результатов требует существенного уточнения или переработки теории.

Смешанные растворы магнитных и немагнитных полупроводников, называемые часто полумагнитными полупроводниками (ПМП), интенсивно изучаются на протяжении последнего десятилетия. Одной из причин интереса к ним является то, что обменное взаимодействие электронных состояний полупроводника с электронами внутренних оболочек магнитной примеси (d -электроны ионов марганца) существенно влияет на магнитооптические свойства этих материалов [1, 2]. Эффективным методом исследования обменного взаимодействия слабосвязанных состояний в ПМП с локализованными спиновыми моментами Mn оказалось наблюдение неупругого комбинационного рассеяния света с переворотом спина донорного электрона (спин-флип комбинационное рассеяние, СФКР) [3-5]. Важнейшим результатом этих исследований было определение величин обменного интеграла в различных ПМП. Экспериментальные исследования инициировали попытки разработки теории СФКР. В результате появились три несколько отличающихся, но в принципе эквивалентных подхода, основанные на введении понятия о связанном магнитном поляроне [6-9]. Теоретические предсказания во всех случаях оказываются одинаковыми, а отличие в основном заключается в способе написания эффективного гамильтониана взаимодействия. Сравнение теоретических расчетов с экспериментом, проведенное в [8, 10], показало неплохое согласие в отсутствие внешнего магнитного поля. Однако теория дает описание формы линии СФКР и в присутствии внешнего магнитного поля. Такое сравнение в литературе автору данной работы не встречалось.

Целью представляемой работы является проверка теоретических предсказаний для СФКР в присутствии магнитного поля. В результате исследования показано, что для достаточно совершенных кристаллов предсказания теории оказываются справедливыми. Однако в некоторых случаях объяснение экспериментальных результатов требует существенного уточнения или переработки теории. Раздел 1 посвящен методике эксперимента, в разделе 2 рассмотрена теория СФКР и сформулированы выводы, используемые в разделе 3 при сравнении эксперимента и теории.

1. Методика эксперимента

Методика эксперимента подобна описанной в [11]. Отметим лишь основные моменты, важные в представляемой работе.

В эксперименте исследовались кристаллы $Cd_{1-x}Mn_xS$ (с двумя различными концентрациями Mn) и $Zn_{1-x}Mn_xSe$. Концентрация Mn по загрузке

была около 0.5, 1.4 и 4 атомных процента соответственно. В дальнейшем перечисленные материалы для краткости будут обозначаться: CdMnS-1, CdMnS-2 и ZnMnSe. Образцы помещались в жидкий гелий. Интенсивность облучения была небольшой для избежания перегрева. Температура определялась по давлению паров He⁴.

Эффективная температура T_{AF} антиферромагнитного Mn—Mn взаимодействия определялась для каждого материала из температурной зависимости коэффициента фарадеевского вращения плоскости поляризации света, который в малых магнитных полях пропорционален магнитной восприимчивости. Измеренные значения T_{AF} в перечисленных материалах составляли 0.2 ± 0.02 , 0.7 ± 0.1 и 0.7 ± 0.1 К соответственно.

При низких температурах ($T \sim 1.4$ К) в спектрах наблюдается только стоксовая компонента СФКР. Поскольку в работе исследовалась форма линии СФКР, разрешение используемой спектральной аппаратуры устанавливалось таким, чтобы не вносить существенных искажений в спектры. Для возбуждения использовалось излучение Ar⁺-лазера с длинами волн $\lambda = 5017$ и 4579 Å. При определении степени циркулярной поляризации линии СФКР вносилась поправка на деполяризацию пластинкой $\lambda/4$, используемой в качестве анализатора.

2. Обсуждение теории СФКР

Как уже было отмечено выше, для описания СФКР в ПМП было предложено несколько эквивалентных подходов. В дальнейшем в данной статье будет обсуждаться подход, развитый Дитлом и Спалеком [6, 7].

В этом подходе рассматривается вращательно инвариантная форма приближения молекулярного поля для описания $s-d$ -обменного взаимодействия. В этом случае можно определить, что на электрон действует некоторое эффективное магнитное поле, пропорциональное плотности локализованных моментов ионов Mn, а марганцевые моменты находятся в эффективном поле, пропорциональном плотности волновой функции (ВФ) донорного электрона. Внешнее магнитное поле в таком рассмотрении добавляется к эффективным полям для каждой подсистемы.

Основным моментом в теории связанного магнитного полярона является получение эффективного гамильтониана системы, определяющего распределение вероятности величины расщепления Δ и направления оси квантования полярона. В [7] показано, что в присутствии внешнего магнитного поля H гамильтониан системы и распределение вероятности имеют следующий вид

$$\mathcal{H}(\Delta) = s\Delta + (\Delta - \Delta_0)^2 / 8\epsilon_p, \quad (1)$$

$$P(\Delta) = C \operatorname{ch} \left(\frac{\Delta}{2T} \right) \exp \left[-\frac{\Delta^2 + \Delta_0^2}{8\epsilon_p T} + \frac{\Delta \Delta_0}{4\epsilon_p T} \cos \theta \right], \quad (2)$$

$$\epsilon_p = \frac{S^2}{32\pi} \left[\frac{\alpha N_0}{a^3 N_0} \right] [\alpha N_0 \bar{x}] \frac{1}{T + T_{AF}} B'_S(\beta) \quad (3)$$

— характеристическая энергия полярона;

$$\Delta_0 = \frac{H}{H} S [\alpha N_0 \bar{x}] B_S(\beta) + g^* \mu_B H, \quad (4)$$

α — константа обменного взаимодействия; a — боровский радиус донорного состояния; \bar{x} — эффективная мольная концентрация Mn; N_0 — плотность катионных состояний; $B_S(\beta)$, $B'_S(\beta)$ — функция Бриллюэна и ее производная; S , s — спиновые переменные марганца и донорного электрона; θ — угол между осью квантования полярона и направлением внешнего магнитного поля. Δ_0 физически соответствует расщеплению донорного состояния внешним полем и складывается из прямого зеемановского расщепления и обменного расщепления из-за взаимодействия с марганцевыми электронами.

Из анализа угловой зависимости $P(\Delta)$ следует, что полярону, характеризующемуся расщеплением Δ , следует приписать магнитный момент $M_{\text{эфф}}$ такой, что

$$\frac{M_{\text{эфф}} H}{T} = \frac{\Delta \Delta_0}{4 \epsilon_p T} = \xi. \quad (5)$$

Физически этот момент соответствует намагниченности марганцевой подсистемы в объеме полярона, обусловленной присутствием донорного электрона. В малых магнитных полях ($\beta \ll 1$)

$$\xi \approx 8\pi \left[\frac{a^3 N_0}{a N_0} \right] \Delta \frac{g \mu_B H}{T}. \quad (6)$$

Ключевым моментом при переходе от описания полярона к теории СФКР является предположение, что именно распределение (2), несколько измененное с учетом флуктуаций концентрации магнитной примеси [7], описывает наблюдаемую форму линии СФКР. С учетом угловой зависимости матричных элементов электронных переходов выражения для формы линии стоксовой компоненты СФКР имеют следующий вид

$$I(\hbar\omega) = C_0 (\hbar\omega)^2 \exp \left[\frac{\left(\hbar\omega - \frac{\Gamma^2}{4T} \right)^2}{\Gamma^2} \right] \quad (7)$$

для нулевого магнитного поля и

$$I(\hbar\omega) = C_1 (\hbar\omega) \exp \left[\frac{\left(\hbar\omega - \Delta_0 - \frac{\Gamma^2}{4T} \right)^2}{\Gamma^2} \right] \quad (8)$$

для магнитных полей таких, что $\xi \gg 1$ ($\hbar\omega$ — спектральный сдвиг от линии лазера, $I(\hbar\omega)$ — интенсивность СФКР для данного спектрального сдвига). В переходной области ($\xi \sim 1$) выражение для $I(\hbar\omega)$ оказывается более сложным. Параметр Γ в этих выражениях имеет следующий вид

$$\Gamma^2 = \frac{S}{4\pi} \left[\frac{a N_0}{a^3 N_0} \right] [\alpha N_0 \bar{x}] \left\{ \frac{T}{T + T_{AF}} B'_S(\beta) + \eta^2 B_S^2(\beta) \right\}. \quad (9)$$

В этом выражении первый член в фигурных скобках учитывает флуктуации намагниченности, а второй — флуктуации концентрации ($\eta = = (dx/dx)_x$). Следует отметить, что внешнее магнитное поле входит в выражения (7) и (8) только через величины $B_S(\beta)$ и $B'_S(\beta)$.

Для допустимости проведенного в [6, 7] теоретического рассмотрения должно выполняться соотношение

$$\frac{1}{T} \ll \frac{1}{T_2} \ll \Gamma, \quad (10)$$

где T — время релаксации марганцевых спинов, T_2 — время спиновой релаксации донорного электрона.

Первое неравенство в совокупности со вторым подразумевает адиабатическое приближение при решении задачи о поляроне. Второе неравенство подразумевает, что однородная ширина уровня донорного электрона в поляроне, определяемая его временем релаксации, значительно меньше уширения, вызванного флуктуациями намагниченности и состава.

Приведенное выше столь подробное рассмотрение теории СФКР необходимо нам для того, чтобы сделать следующие выводы.

1) Из всего набора параметров, входящих в уравнения (1)–(9), только три: α , \bar{x} и a связаны собственно с обменным взаимодействием, приводящим к образованию полярона, причем они входят только в виде двух комбинаций: $[\alpha N_0 \bar{x}]$ и $\left[\frac{a N_0}{a^3 N_0} \right]$ (N_0 — число, введенное для получения энергетической размерности этих величин).

2) Эти две величины полностью характеризуют поляронное состояние в данном ПМП и могут быть измерены независимым образом: $[\alpha N_0 \bar{x}]$ —

из максимального расщепления донорного уровня в большом внешнем магнитном поле, используя выражение (4); $\left[\frac{\alpha N_0}{\alpha^3 N_0} \right]$ — из зависимости в малых магнитных полях степени поляризации ансамбля поляронов, характеризующихся определенной величиной расщепления, используя выражения (5) и (6).

3) Помимо других возможных способов эти два параметра могут быть определены при исследовании спектров СФКР данного ПМП, причем

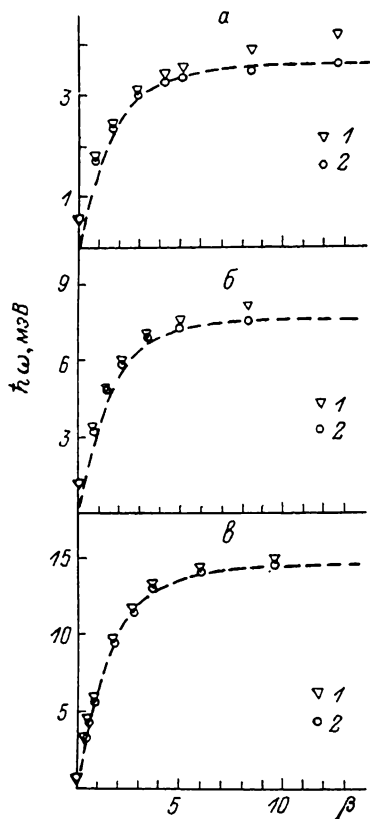


Рис. 1. 1 — зависимости спектрального сдвига ($h\omega$) максимума линии СФКР в различных ПМП от величины безразмерного параметра β . 2 — те же зависимости после вычитания прямого зеемановского вклада.

Штриховые кривые — зависимости, пропорциональные величине функции Бриллюэна. α — CdMnS-1, β — CdMnS-2, ϵ — ZnMnSe.

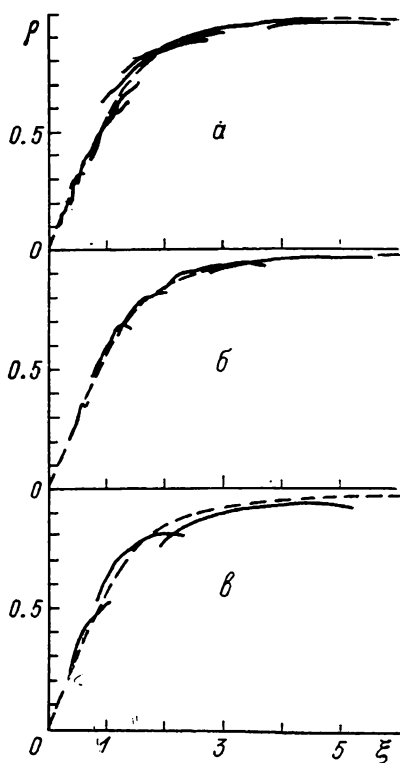


Рис. 2. Зависимости степени циркулярной поляризации (ρ) излучения в линии СФКР в различных ПМП от величины безразмерного параметра ξ — сплошные кривые.

Штриховые кривые — теоретические зависимости, определяемые по (11). α — CdMnS-1, β — CdMnS-2, ϵ — ZnMnSe.

в определенной степени без привлечения положений теории, дающих конкретный вид формы линии СФКР. Таким образом, еще до появления теории были определены величины параметров $[\alpha N_0 \bar{x}]$ в различных ПМП и вычислены значения обменного интеграла [3, 4]. А в [11] была определена величина магнитного момента, ассоциированного с донором.

3. Экспериментальные результаты и сравнение с теорией

Для проведения теоретических и экспериментальных результатов определим величины основных энергетических параметров, характеризующих полярон в каждом из исследуемых ПМП.

На рис. 1 представлены зависимости величины спектрального сдвига максимума линии СФКР от безразмерной комбинации: $\beta = S \frac{g^{\pm} B H}{T + T_{AF}}$. За

вычетом прямого зеемановского вклада получающиеся зависимости обнаруживают характерное насыщение, что отражает присутствие бриллюэновской функции в (4). Из величин расщепления определялись значения параметров $[\alpha N_0 \bar{x}]$ для каждого материала.

На рис. 2 представлены зависимости степени циркулярной поляризации излучения СФКР от безразмерной величины ξ (6): Каждая экспериментальная кривая (сплошные линии на рисунках) есть спектральная зависимость степени циркулярной поляризации излучения в линии СФКР, растянутая в соответствующем масштабе, определяемом величиной маг-

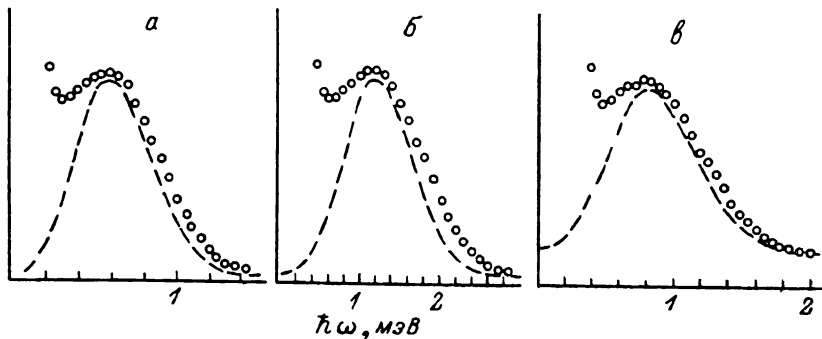


Рис. 3. Экспериментальные спектры СФКР в различных ПМП при нулевом магнитном поле — точки.

По горизонтальным осям отложен спектральный сдвиг от линии лазера. По вертикали — интенсивность в произвольных единицах. Штриховые кривые — аппроксимации по формуле (7). а — CdMnS-1, б — CdMnS-2, в — ZnMnSe.

нитного поля и температурой. Для ПМП CdMnS со структурой гексагональной симметрии связь степени циркулярной поляризации излучения СФКР с поляризацией полярного ансамбля с данным Δ , описываемой функцией Ланжевена L , была рассчитана в [11],

$$p = \frac{\xi L(\xi)}{\xi - L(\xi)}. \quad (11)$$

Для ПМП ZnMnSe со структурой кубической симметрии выражение имеет такой же вид, хотя его вывод требует более сложных выкладок, чем в [11].

Величины основных энергетических параметров, характеризующих полярон в исследуемых ПМП

	CdMnS-1	CdMnS-2	ZnMnSe
$[\alpha N_0 \bar{x}]$, мэВ	$1.44 \pm .20$	$3.06 \pm .20$	$6.00 \pm .40$
$\left[\frac{\alpha N_0}{a^3 N_0} \right]$, мэВ	$0.85 \pm .07$	$0.97 \pm .08$	$0.30 \pm .04$

Величины параметров $\left[\frac{\alpha N_0}{a^3 N_0} \right]$ для каждого из исследуемых материалов определялись подбором, используя выражение (6), по наилучшему совпадению экспериментальных и теоретических (штриховые кривые на рис. 2) зависимостей.

Определенные таким образом величины основных энергетических параметров, характеризующих полярон на доноре в каждом из исследуемых ПМП, сведены в таблицу.

На рис. 3 представлены наблюдаемые в исследуемых материалах спектры СФКР при нулевом магнитном поле и их аппроксимация с использованием выражения (7). При подборе Γ учитывалось, что в спектре линия СФКР расположена на крыле интенсивной линии рэлеевского

рассеяния лазерного излучения. На рис. 4 представлены спектры СФКР в магнитных полях, близких к насыщающим, и аппроксимация их по формуле (8). Из рисунков видно, что аппроксимация во всех случаях оказывается удовлетворительной. Некоторое расхождение следует отметить лишь для ПМП CdMnS-2 на рис. 4.

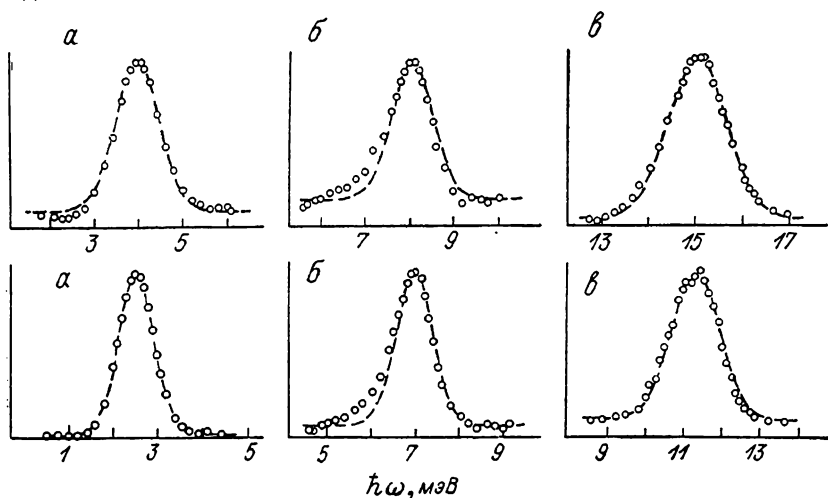


Рис. 4. Экспериментальные спектры СФКР в различных ПМП при магнитных полях близких к насыщающим (для магнитопримесной подсистемы), — точки.

Верхние рисунки от нижних отличаются большей величиной магнитного поля и соответственно большим спектральным сдвигом. Штриховые кривые — аппроксимации по формуле (8). а — CdMnS-1, б — CdMnS-2, в — ZnMnSe.

На рис. 5 представлены значения параметра Γ в различных материалах, определенные в результате аппроксимации экспериментальных спектров СФКР, в зависимости от величины функции Бриллюэна $B_S(\beta)$, определяемой из величины спектрального сдвига. Масштаб по вертикали для каждого из рисунков выбран таким, что коэффициент перед фигурной

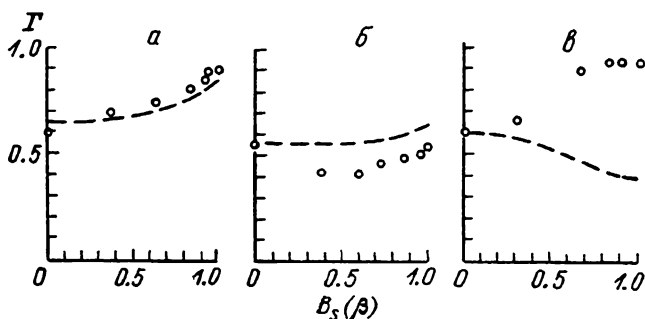


Рис. 5. Зависимости величины ширины линий СФКР Γ в различных ПМП от величины $B_S(\beta)$ — точки.

Штриховые кривые — теоретические зависимости, определяемые из выражения (9). а — CdMnS-1, б — CdMnS-2, в — ZnMnSe.

скобкой в (9) был равен единице. Штриховыми линиями на рисунках представлены теоретические зависимости, получаемые из (9) для каждого материала. Величины параметров η для каждого материала вычислялись, используя формулу (8) из работы [12], а также померенные в представляемой работе параметры $[\alpha N_0 x]$ и точные значения обменных интегралов αN_0 из работ [13].

Из рис. 5 видно, что для нулевого магнитного поля ($B_S(\beta)=0$) экспериментально определяемые значения параметра Γ для всех материалов достаточно хорошо согласуются с теоретически предсказанными, что от-

мечалось и в других работах [8, 10]. Однако для ненулевых магнитных полей удовлетворительное согласие наблюдается только для кристаллов CdMnS-1. Для кристаллов CdMnS-2 линия СФКР оказывается уже, а в ZnMnSe шире, чем ожидается по теории.

Сужение линии может быть объяснено, если допустить, что в результате обмена или термовозбужденного перескока электрон может переходить на другие близко расположенные донорные центры. В этом случае флуктуации концентрации магнитной примеси должны усредняться, что приведет к сужению линии СФКР. Из-за нарушения второго неравенства в (10) в этом случае и форма линии будет несколько иной, что можно наблюдать на рис. 4 для CdMnS-2.

Что касается ZnMnSe, то, поскольку при больших полях ширина линии СФКР определяется в основном флуктуациями концентрации, возможное объяснение требует присутствия в материале сильных неоднородностей в распределении магнитной примеси. В малых полях такие изменения состава будут не столь важны. При этом, однако, представляется удивительным, что форма линии СФКР в больших полях хорошо описывается выражением (8) (рис. 4).

Таким образом, представляется, что теория, развитая Дитлом и Спалеком, дает адекватное описание эксперимента в достаточно совершенных кристаллах — материалах с небольшой концентрацией магнитной примеси (CdMnS-1). Повышение уровня легирования марганцем приводит, по-видимому, в процессе роста, к загрязнению кристаллов. В этом случае оказывается существенным взаимодействие донорных состояний (CdMnS-2), и теория должна быть развита для учета эффекта обменного сужения. При больших концентрациях магнитной примеси могут оказаться важны и другие взаимодействия, хотя возможно, что наблюдающиеся в ZnMnSe результаты объясняются несовершенством кристаллов.

В завершение хочу поблагодарить Т. Дитла за полезные обсуждения

Л и т е р а т у р а

- [1] Galazka R. R. Proc. 14th Int. Conf. Phys. of Semicond. Ed. by V. L. N. Wilson, Edinburg, 1978. 133 p.
- [2] Комаров А. В., Рябченко С. М., Терлецкий О. В., Жеру И. И., Иванчук Р. Д. ЖЭТФ, 1977, т. 73, № 2, с. 608—618.
- [3] Алов Д. Л., Губарев С. И., Тимофеев В. Б., Шенель Б. Н. Письма в ЖЭТФ, 1981, т. 34, № 2, с. 76—80.
- [4] Nawrocki M., Planel R., Fishman C., Galazka R. R. Phys. Rev. Lett., 1981, vol. 46, N 10, p. 735—738.
- [5] Peterson D. L., Petrou A., Dutta M., Ramdas A. K., Rodrigues S. Sol. St. Commun., 1982, vol. 43, N 9, p. 667—669.
- [6] Dieltl T., Spalek J. Phys. Rev. Lett., 1982, vol. 48, N 5, p. 355—358.
- [7] Dieltl T. J. Magn. and Magn. Mat., 1983, vol. 38, N 1, p. 34—44.
- [8] Heiman D., Wolff P. A., Warnock J. Phys. Rev. B, 1983, vol. 27, N 8, p. 4848—4860.
- [9] Рябченко С. М., Семенов Ю. Г. ЖЭТФ, 1983, т. 84, № 4, с. 1419—1431.
- [10] Peterson D. L., Bartolomew D. U., Debska U., Ramdas A. K., Rodrigues S. Phys. Rev. B, 1985, vol. 32, N 1, p. 323—339.
- [11] Алов Д. Л., Губарев С. И., Тимофеев В. Б. ЖЭТФ, 1983, т. 84, № 5, с. 1806—1816.
- [12] Shapira Y., Foner S., Ridgley D. H., Dwight K., Wold A. Phys. Rev. B, 1984 vol. 30, N 7, p. 4021—4023.
- [13] Heiman D., Shapira Y., Foner S. Sol. St. Commun., 1983, vol. 45, N 10, p. 899—902; 1984, vol. 51, N 8, p. 603—608.

Институт физики твердого тела АН СССР
Черноголовка
Московская область

Поступило в Редакцию
31 июля 1987 г.