

Образование ядерного спинового полярона при оптической ориентации в полупроводниках типа GaAs

© И.А. Меркулов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Поступила в Редакцию 5 декабря 1997 г.)

Развита теория образования ядерного спинового полярона, возникающего при оптическом охлаждении ядерных спинов в окрестности донорных центров. Показано, что имеется предельное значение ядерной спиновой температуры, выше которой полярон не образуется. В случае мелкого донора в GaAs эта температура составляет примерно 10^{-7} К. Возникновение ядерного спинового полярона должно проявиться в аномальном увеличении времени спиновой релаксации суммарного спина образующих его ядер.

Сверхтонкое взаимодействие между электронами проводимости и ядрами кристаллической решетки в полупроводниках типа GaAs открывает возможность для появления ядерных магнитополяронных состояний, возникающих, например, вокруг локализованного на донорном центре электрона. Контактное сверхтонкое взаимодействие электронов в этих кристаллах описывается скалярным произведением их спина на спин ядра кристаллической решетки [1] и по виду не отличается от обменного взаимодействия электронов проводимости и магнитных ионов в полумагнитном полупроводнике, где магнитные поляроны исследованы экспериментально и теоретически [2]. Однако из-за малости величины параметра сверхтонкого взаимодействия даже при температуре жидкого гелия корреляция между спином локализованного на донорном центре электрона и спинами окружающих его ядер кристаллической решетки пренебрежимо малы. Лишь при сверхнизких температурах порядка 10^{-6} – 10^{-7} К поляризованные электроны заметно поляризуют окружающие ядра.

Достигнуть таких температур удается путем оптического охлаждения ядерной спиновой системы в условиях оптической ориентации [1,3]. В экспериментах работы [4] были достигнуты наиболее низкие значения ядерной спиновой температуры T_N порядка 10^{-6} К, при которой даже слабое поле в несколько эрстед может заметно поляризовать ядерные спины. В этих условиях наблюдалось аномальное увеличение низкочастотных составляющих спинового коррелятора ядер, которое можно интерпретировать как торможение релаксации ядерной поляризации. На подобное торможение спиновой релаксации при образовании магнитного полярона в полумагнитных полупроводниках указывалось в работе [5].

В настоящей работе показано, что оптическое охлаждение ядерной спиновой системы полупроводника ориентированными электронами действительно может привести к возникновению ядерных спиновых поляронов, образование которых должно проявляться, в частности, в торможении процесса спиновой релаксации входящих в полярон ядерных спинов.

В отличие от ситуации в полумагнитных полупроводниках образование ядерного спинового полярона приводит к очень малому изменению энергии локализации

носителя. Время перескока электрона с донора на донор малое по сравнению с характерными временами его взаимодействия с ядерными спинами, так что поляронное состояние возникает под действием среднего поля, создаваемого на ядрах большим числом электронов, распределение спинов которых характеризуется температурой кристаллической решетки. Ядерный магнитный полярон образуется лишь в том случае, если произведение спиновой температуры ядер на температуру электронов меньше некоторого критического значения, зависящего от параметров локализуемого электронами потенциала. Как показывают численные оценки, для мелких кулоновских доноров в GaAs это значение может быть достигнуто методом оптического охлаждения, но оно ниже спиновой температуры, достигавшейся в экспериментах [4]. Таким образом, несмотря на принципиальную возможность торможения ядерной спиновой релаксации при образовании магнитополяронных состояний в условиях оптической ориентации носителей, экспериментальные результаты [4] не удается объяснить в рамках модели ядерного магнитного полярона.

В разделе 1 в приближении коротких времен корреляции сверхтонкого поля, создаваемого локализованным электроном на окружающих донорных ядрах, развита теоретическая модель ядерного спинового полярона, описываемого двумя спиновыми температурами. В разделе 2 анализируется влияние сверхтонкого взаимодействия ядер с локализованным электроном на темп спиновой релаксации суммарного ядерного спина.

1. Ядерный магнитный полярон

Оценим возможность появления скоррелированных состояний спинов электронов (имеющих температуру решетки) и спинов окружающих донорные центры ядер (охлажденных до очень низкой температуры). Исходя из гамильтониана сверхтонкого контактного взаимодействия

$$\hat{H}_{sf} = \sum_n a |\Psi(\mathbf{r}_n)|^2 (\hat{\mathbf{S}}_n), \quad (1)$$

нетрудно определить, что при наличии у электронов среднего спина $\langle \mathbf{S} \rangle$ на ядерные спины действует среднее

электронное поле

$$\mathbf{B}_e(\mathbf{r}_n) = a|\Psi(\mathbf{r}_n)|^2\langle\mathbf{S}\rangle, \quad (2)$$

а при наличии средней поляризации окружающих донор ядер на локализованный электрон действует ядерное поле

$$\mathbf{B}_N = a \sum_n |\Psi(\mathbf{r}_n)|^2 \langle \mathbf{I}_n \rangle \approx aN \iiint |\Psi(\mathbf{r})|^2 \langle \mathbf{I}(\mathbf{r}) \rangle d^3r. \quad (3)$$

Здесь \mathbf{S} и Ψ — оператор спина и волновая функции связанного на примеси электрона, \mathbf{I}_n — оператор спина ядра, расположенного в точке \mathbf{r}_n , a — параметр сверхтонкого взаимодействия, а N — концентрация ядер в кристаллической решетке (выбранные в соответствии с (2), (3) электронное и ядерное поля имеют размерность энергии, и далее мы будем приводить их численные значения в единицах тепловой энергии, соответствующей одному градусу Кельвина). При полной поляризации ядер величина ядерного поля не зависит от размеров области локализации электрона и для арсенида галлия эквивалентна магнитному полю в 5.29 Т [3] или

$$B_{N,\max} = \frac{3}{2}aN \approx k_B \cdot 1.6 \text{ К}, \quad (4)$$

где k_B — постоянная Больцмана.

Обычно эксперименты проводятся при температуре жидкого гелия (4.2 К). Тогда даже в случае предельно высокой поляризации ядер кристаллической решетки расщепление электронных спиновых уровней оказывается меньшим характерной тепловой энергии, и среднее значение спина электронов в ядерном поле \mathbf{B}_N дается высокотемпературной формулой

$$\langle \mathbf{S} \rangle \approx \frac{\beta_e \mathbf{B}_N}{4} \left(1 - \frac{1}{3} \left(\frac{\beta_e \beta_N}{2} \right)^2 \right), \quad (5)$$

где β_e — обратная температура электронов.

Электрон одновременно взаимодействует примерно с 10^5 ядер, расположенных в непосредственной окрестности донорного центра. Поэтому характерные значения электронного поля в сотни тысяч раз меньше $B_{N,\max}$. Заметная величина ядерной поляризации в этом поле достигается лишь при глубоком охлаждении ядерной спиновой системы полупроводника. Тогда учитывая, что все ядра в кристалле GaAs имеют спин 3/2, в рамках высокотемпературного приближения имеем

$$\langle \mathbf{I}_n \rangle \approx \frac{5}{4} \beta_N \mathbf{B}_e(\mathbf{r}_n) \left(1 - \frac{17}{60} (\beta_N B_e(\mathbf{r}_n))^2 \right), \quad (6)$$

где β_N — обратная спиновая температура системы охлажденных ядер. Из (6) и (2) следует, что в окрестности донорного центра локализованные электроны со средним спином $\langle \mathbf{S} \rangle$ создают облако ядерной поляризации, суммарный спин которого примерно равен

$$\mathbf{I}_P \approx \frac{5}{4} \beta_N a N \langle \mathbf{S} \rangle. \quad (7)$$

Подставляя (2) в (6), (6) в (3) и (3) в (5), легко получить самосогласованное уравнение для среднего значения спина локализованного электрона в ядерном поляроне

$$\langle \mathbf{S} \rangle \approx \varepsilon(\beta_e, \beta_N) (1 - \gamma(\beta_e, \beta_N) \langle \mathbf{S} \rangle^2) \langle \mathbf{S} \rangle, \quad (8)$$

где

$$\varepsilon(\beta_e, \beta_N) = \frac{5}{16} \beta_e \beta_N a^2 N \iiint |\Psi(\mathbf{r})|^4 d^3r,$$

$$\gamma(\beta_e, \beta_N) = \frac{4}{3} \varepsilon(\beta_e, \beta_N)^2 + \frac{17}{60} (\beta_N a)^2 \frac{\iiint |\Psi(\mathbf{r})|^8 d^3r}{\iiint |\Psi(\mathbf{r})|^4 d^3r}. \quad (9)$$

Ядерный магнитный полярон образуется, если $\varepsilon(\beta_e, \beta_N) > 1$. При этом среднее значение проекции спина локализованного электрона на направление ядерного поля полярона дается формулой

$$\langle S \rangle = \sqrt{\frac{\varepsilon(\beta_e \beta_N) - 1}{\gamma(\beta_e, \beta_N)}}. \quad (10)$$

Считая, что электроны локализованы в основных состояниях мелких кулоновских доноров с боровским радиусом $r_B = \hbar/\sqrt{2m'E}$ (m' — эффективная масса электрона, а E — энергия связи с примесным центром), получаем окончательные выражения для критерия возникновения ядерного полярона

$$\varepsilon(\beta_e, \beta_N) = \frac{5\beta_e \beta_N B_{N,\max}^2}{6^3 N_B},$$

$$\gamma(\beta_e, \beta_N) = \frac{1}{3^5} \left(\frac{\beta_N B_{N,\max}}{N_B} \right)^2 \left(\frac{34}{5} + \left(\frac{5\beta_e B_{N,\max}}{12} \right)^2 \right) \quad (11)$$

и его суммарного спина

$$|I_P| = \frac{108 N_B}{\beta_N B_{N,\max}} \times \sqrt{\frac{(5\beta_e \beta_N B_{N,\max}^2 - 216 N_B) 15}{N_B (4896 + 125 (\beta_e B_{N,\max})^2)}} = N_B j. \quad (12)$$

Здесь $N_B = (4/3)N\pi r_B^3$ — характерное число входящих в полярон ядер, а j — среднее значение спина одного такого ядра в сверхтонком поле образующего полярон электрона.

Подставляя в (11), (12) параметры, соответствующие типичному эксперименту на мелком водородоподобном донорном центре в кристалле арсенида галлия ($E_B = 5.59 \text{ meV}$, $r_B = 95 \text{ \AA}$, $N_B = 1.6 \cdot 10^5$, $B_{N,\max} = 1.6 \text{ К}$, $T_e = \beta_e^{-1} \approx 4.2 \text{ К}$), находим, что ядерный спиновый полярон образуется при $\beta_N \geq 1.1 \cdot 10^7 \text{ К}^{-1}$.

Развитая теория является простейшим обобщением теории магнитополяронного состояния при одинаковых значениях спиновых температур электрона и магнитных ионов [2]. Из (11) несложно увидеть, что в случае различных спиновых температур магнитополяронное состояние может возникнуть лишь при одинаковых знаках

β_N и β_e . Если же знаки спиновых температур электронов и ядер противоположны, то спонтанного самоупорядочения ядерных и электронного спинов не происходит: возникающий в поле флуктуаций ядерной поляризации квазиравновесный спин электронов $\langle S \rangle$ создает на ядрах электронное поле, которое стремится подавить (а не усилить) первоначальное отклонение ядерной поляризации от нуля.

Оценим теперь величину ядерной спиновой температуры, которую можно получить в экспериментах по оптической ориентации. Для этого рассмотрим двухстадийную процедуру, использовавшуюся в [4] для глубокого охлаждения ядерной спиновой системы полупроводника *n*-типа. На первом этапе проводится оптическое охлаждение в сильном магнитном поле (H), при котором максимальное достижимое значение обратной ядерной спиновой температуры связано с неравновесным спином фотоэлектронов $\langle S_0 \rangle$ (или со степенью оптически индуцированной циркулярной поляризации люминесценции $\rho = \langle S_0 \rangle$) соотношением [1]

$$\beta_N(H) = \frac{4k_B}{\mu_I} \frac{(\mathbf{H} \langle S_0 \rangle)}{H^2 + \xi H_L^2} \approx \frac{4k_B}{\mu_I} \frac{\rho}{H}, \quad (13)$$

где H_L^2 — средний квадрат хаотического поля, действующего на спин ядра (I) со стороны соседних ядерных спинов, μ_I — магнитный момент ядра, k_B — постоянная Больцмана, а ξ — параметр, величина которого зависит от длины когерентности электронного поля. Для GaAs $\xi = 3$, а $H_L \approx 1.7 \text{ Г}$ [4].

На втором этапе накачивающий свет выключался и внешнее магнитное поле адиабатически уменьшалось до нуля. При этом ядерная спиновая температура понижалась до величины

$$\beta_N(0) = \beta_N(H) \sqrt{\frac{H^2 + H_L^2}{H_L^2}} \approx \frac{4k_B}{\mu_I} \frac{\rho}{H_L}. \quad (14)$$

Сравнивая это выражение с формулами для критического значения ядерной спиновой температуры (9) и (11), получаем, что в этом случае вокруг равновесных электронов, локализованных на мелких водородоподобных донорах в GaAs, может возникнуть ядерный магнитный полярон, если на первом этапе эксперимента выполняется условие

$$\langle S_0 \rangle \geq \frac{54\mu_I H_L N_B}{5I B_{N,\max}^2 k_B}. \quad (15)$$

В арсениде галлия максимальное значение оптически ориентированного спина электронов составляет 0.25 [1], а отношение μ_I/k_B изменяется от $3.5 \cdot 10^{-8} \text{ К/Г}$ (для ядер As) до $6.2 \cdot 10^{-8} \text{ К/Г}$ (для изотопа Ga⁷¹) [6]. Подставляя в (15) среднее значение $5 \cdot 10^{-8} \text{ К/Г}$ и указанные выше значения других параметров, находим

$$\langle S \rangle \beta_e \geq 0.05 \text{ К}^{-1}. \quad (16)$$

В условиях оптической ориентации величина $\langle S \rangle$ меньше 0.25. Сопоставляя эту величину с оценкой (16), видим, что образование спинового ядерного полярона возможно, если температура кристалла не превосходит 5 К.¹

При температуре жидкого гелия для образования ядерного спинового полярона необходимо, чтобы средний спин ориентированных электронов был не меньше 0.2. В экспериментах [4] эта величина составляла примерно 0.025, т.е. была недостаточной для образования поляронного состояния. Однако в принципе ядерные поляроны могут возникать в экспериментах по оптическому охлаждению ядерной спиновой системы полупроводника при более низкой температуре решетки или для более глубоких примесных центров.

2. Релаксация поляризации суммарного спина входящих в полярон ядер

Изменение энергии связи электрона при образовании ядерного магнитного полярона малое, так что экспериментальное детектирование существования ядерного полярона по стоксову сдвигу люминесценции мало вероятно. Одним из возможных проявлений образования такого полярона может стать изменение скорости релаксации суммарного спина окружающих донорный центр ядер I_{Σ} . Посмотрим, к каким изменениям в поведении I_{Σ} приводит сверхтонкое взаимодействие ядер с локализованным электроном.

Строгий количественный расчет поведения спина ядер во времени представляет собой очень сложную задачу, так как все характерные времена: 1) время изменения вызывающего ядерную спиновую релаксацию хаотического локального поля, действующего на ядерные спины со стороны соседних ядер; 2) период прецессии ядерного спина в этом локальном поле — одинаковы по порядку величины. Поэтому мы приведем здесь только простые оценки, базирующиеся на релаксационном уравнении со случайным полем. Такой подход дает асимптотически точное выражение для коррелятора спина ядерного полярона.

Следуя [7], будем описывать релаксацию отклонений спина окружающих донорный центр ядер $\mathbf{I}(\mathbf{r})$ от равновесного значения уравнением

$$\frac{d\mathbf{I}(\mathbf{r})}{dt} = -\frac{1}{T_2} \left[\mathbf{I}(\mathbf{r}) - \mathbf{J}(\langle \mathbf{S}(\mathbf{I}(\mathbf{r})) \rangle) \right] + \mathbf{f}(t), \quad (17)$$

где $\mathbf{J}(\langle \mathbf{S}(\mathbf{I}(\mathbf{r})) \rangle)$ — равновесное значение ядерного спина в сверхтонком поле локализованных электронов, $\mathbf{f}(t)$ — случайное поле, отвечающее за флуктуации ядерного спина около равновесного значения,² T_2 — характерное

¹ Это значение примерно в 3 раза превосходит максимальное значение критической температуры другого интересного нелинейного эффекта — динамической самополяризации ядер [1].

² В высокотемпературном приближении среднее квадратичное отклонение суммарного спина N_B ядер от равновесного значения составляет $\sqrt{5N_B/4}$.

время релаксации ядерной поляризации, совпадающее по порядку величины с временем затухания коррелятора хаотического поля $\langle \mathbf{f}(0)\mathbf{f}(t) \rangle$.

Пространственное распределение ядерной поляризации $\mathbf{I}(\mathbf{r})$, вообще говоря, произвольное. Однако его можно разбить на две составляющие, одна из которых пропорциональна $\Psi(\mathbf{r})^2$, а другая при интегрировании с $\Psi(\mathbf{r})^2$ дает нуль. Первую можно рассматривать как зародыш поляронного состояния, на спиновую релаксацию которого существенно влияет сверхтонкое взаимодействие с локализованным электроном. В то же время вторая практически не испытывает влияния сверхтонкого поля локализованного электрона.

В линейном приближении для амплитуды зародыша поляронного состояния $\mathbf{J} = \varepsilon \mathbf{I}_P$ и уравнение (17) можно переписать в виде

$$\frac{d\mathbf{I}_P}{dt} = -\frac{1}{T_2'} \mathbf{I}_P + \mathbf{f}(t), \quad (18)$$

где

$$T_2' = \frac{T}{1 - \varepsilon}. \quad (19)$$

При противоположных знаках электронной и ядерной спиновых температур $T_2' < T_2$, и понижение абсолютной величины ядерной спиновой температуры (увеличение $|\varepsilon|$) приводит к уменьшению характерного времени релаксации. При этом в спектральном разложении ядерного спинового коррелятора большую роль начинают играть высокочастотные компоненты.

При одинаковых знаках спиновых температур электронов и ядер охлаждение ядерной спиновой системы приводит к увеличению T_2' и соответственно к понижению характерных частот изменения ядерного спинового коррелятора. В критической точке найденное по формуле (19) время релаксации обращается в бесконечность, а затем становится отрицательным, что свидетельствует о потере устойчивости состояния с $\mathbf{I}_P = 0$. В этой области значений параметров возникает магнитополяронное состояние, и точность линейного приближения для определения \mathbf{I}_P недостаточна.

В магнитополяронном состоянии описываемая (17) релаксация носит более сложный характер. Как и в отсутствии полярона, среднее значение величины ядерного спина \mathbf{I}_P релаксирует к значению (12) с характерным временем порядка T_2 . Однако релаксация ядерного спина по направлению сильно затормаживается.

Действительно, если средняя величина $J(I_P)$ велика по сравнению с ее флуктуациями под действием случайной силы ($\sqrt{5N_B/4}$), то можно приближенно считать, что спин \mathbf{I}_P случайным образом движется по сфере, определяемой уравнением $I_P = N_B j$ (12). За время T_2 спин сдвигается на расстояние порядка $\delta I_P \approx \sqrt{5N_B/4}$, или (что то же самое) изменяет свое направление на угол $\delta\Theta \approx \sqrt{5/(4j^2 N_B)}$. Таким образом, за время порядка T_2 проекция суммарного спина ядер на его первоначальное направление уменьшится на величину $I_P(\delta\Theta)^2/2$. Поскольку на временах, превышающих T_2 ,

корреляции в значениях силы \mathbf{f} отсутствуют, направление последующих шагов процесса релаксации носит случайный характер. Тогда для зависимости от времени спинового коррелятора находим

$$G(t) = G(0) \exp\{-t/\tilde{T}\}, \quad (20)$$

где

$$\tilde{T} \approx T_2 \frac{8j^2 N_B}{5}. \quad (21)$$

Поскольку в окрестности донорного центра находится очень большое число ядер (для GaAs $N_B \approx 1.6 \cdot 10^5$) образование ядерного спинового полярона может привести к гигантскому увеличению времени ядерной спиновой релаксации.

Обратим внимание на то, что в законе релаксации (20) от поведения во времени случайной силы \mathbf{f} зависит только значение времени релаксации \tilde{T} . Это связано с асимптотическим характером формулы, справедливой лишь при временах, значительно превышающих T_2 , когда детали в поведении случайной силы не влияют на конечный результат (подробнее см., например, [8]). Поэтому асимптотическое выражение применимо лишь в том случае, когда величина спина полярона столь велика, что неравенство $T_2 \ll \tilde{T}$ выполняется с достаточно большим запасом.

Автор благодарен В.И. Перелю, М.И. Дьяконову, Б.П. Захарчене, К.В. Кавокину и В.К. Калевичу за полезные обсуждения.

Работа поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований 96-02-16941 и фонда Фольксваген.

Список литературы

- [1] М.И. Дьяконов, В.И. Перель. В сб.: Оптическая ориентация / Под ред. Б.П. Захарчени и Ф. Майера. Наука, Л. (1989). С. 17–61.
- [2] P.A. Wolff. In: Semiconductors and Semimetals / Ed. J.K. Furdyna and J. Kossut. Academic Press, London (1988). V. 25. P. 413–454.
- [3] И.А. Меркулов, В.Г. Флейшер. В сб.: Оптическая ориентация / Под ред. Б.П. Захарчени и Ф. Майера. Наука, Л. (1989). С. 137–207.
- [4] В.К. Калевич, В.Г. Флейшер. Изв. АН СССР. Сер. физ. **47**, 12, 2294 (1983).
- [5] И.А. Меркулов, Д.Р. Яковлев, К.В. Кавокин, G. Mackh, W. Ossau, A. Waag, G. Landwehr. Письма в ЖЭТФ **62**, 4, 313 (1995).
- [6] А. Леше. Ядерная индукция. Иностран. лит., М. (1963).
- [7] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Статистическая физика. Наука, М. (1976). Ч. 1. С. 394.
- [8] Я.Б. Зельдович, А.Д. Мышкис. Элементы математической физики. Наука, М. (1973). С. 223–245.