

Параметры динамической поляризации ядер As в кремнии при низких температурах и сильных магнитных полях

© М.Б. Лифшиц, В.А. Грабарь, Н.С. Аверкиев

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

E-mail: Averkiev@les.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 14 февраля 2024 г.

В окончательной редакции 27 февраля 2024 г.

Принята к публикации 28 февраля 2024 г.

Теоретически описан солид-эффект в структуре Si:As в условиях электронно-парамагнитного резонанса при низких температурах и в сильных магнитных полях. Проведено количественное сопоставление результатов расчета динамической поляризации ядер As в кремнии по механизму Оверхаузера и солид-эффекта с экспериментальными данными. Продемонстрировано хорошее согласие теории и эксперимента и определен ключевой параметр эффектов, время кросс-релаксационных переходов, который для атома As оказался ~ 10 с.

Ключевые слова: ЭПР, солид-эффект, эффект Оверхаузера, флип-флоп переходы, кремний.

DOI: 10.61011/FTP.2024.01.57630.6031

1. Введение

Спины ядер в условиях магнитного ядерного резонанса (ЯМР) и спины электронов в условиях электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) представляют собой квантовые объекты, позволяющие исследовать основные магнитные свойства вещества на микроскопическом уровне. Эффективность этих методов может быть увеличена, если достигнута значительная ядерная поляризация. Термодинамическая (равновесная) поляризация спинов ядер во внешнем магнитном поле мала и полезные сигналы в ЯМР оказываются относительно невелики. Однако в условиях ЭПР можно добиться значительной динамической, неравновесной, но стационарной поляризации ядерных спинов при увеличении интенсивности переходов с изменением проекции спина электрона [1]. В работах [2,3] динамическая поляризация ядер была осуществлена в условиях ЭПР для электронов, локализованных на вакансиях азота в алмазе, что позволило усилить сигнал ЯМР на порядок для ряда дефектов в этом материале при низких и комнатных температурах.

Динамическая поляризация ядер возможна при наличии сверхтонкого взаимодействия между спином электрона, локализованного на примеси, и спином ядра. Кроме того, необходимы флип-флоп переходы с одновременным переворотом спина электрона и спина ядра. Время таких переходов оказывается длиннее на несколько порядков времени спиновой релаксации электронов (происходящей при сохранении проекции спина ядра), однако именно за счет флип-флоп переходов устанавливается равновесное распределение по проекциям спина ядра во внешнем магнитном поле. Предполагается, что в условиях экспериментов время ядерной спиновой релаксации без учета взаимодействия с локализованным электроном много длиннее времен спиновой релаксации электронов и флип-флоп переходов. Различают два ос-

новных механизма динамической поляризации в условиях ЭПР. Первый, эффект Оверхаузера, реализуется при возбуждении разрешенных переходов с изменением проекции спина электрона и сохранении проекции ядерного спина, второй, так называемый солид-эффект, возникает при возбуждении запрещенных флип-флоп переходов, при которых сохраняется суммарная проекция спина электрона и спина ядра. Величина динамической ядерной поляризации существенно превосходит равновесную ядерную поляризацию во внешнем магнитном поле и поэтому равновесная поляризация не принимается во внимание. Величина динамической ядерной поляризации зависит от условий ЭПР и при не слишком больших внешних полях и гелиевых температурах (когда разница заселенностей спиновых подуровней электрона невелика), степень ориентации ядер мала и для ее обнаружения необходимо использовать режим насыщения линий ЭПР. Ситуация принципиально изменяется при использовании сильных магнитных полей и низких температур, когда заселенности электронных состояний с разной проекцией спина отличаются на несколько порядков. В этом случае степень ядерной поляризации может достигать 100% при относительно слабых накачках. Именно такая ситуация реализована в работах [4–7] для ряда примесей в кремнии.

Цель данной работы заключается в количественном сопоставлении экспериментальных данных [5] с расчетами динамической поляризации в режиме эффекта Оверхаузера [8] и с приведенным далее расчетом солид-эффекта для получения величины времени флип-флоп переходов и определения механизма флип-флоп переходов в Si:As. В работе [5] оценено время флип-флоп переходов на основе простого предположения об экспоненциальном изменении степени поляризации ядер от времени, однако в работах [7,8] показано, что зависимости величин сигналов ЭПР и величины динамической поляризации ядер от времени накачки не могут

быть описаны одной экспоненциальной функцией и для корректной оценки времен необходимо знание точной зависимости величин сигналов от времени.

2. Динамическая поляризация ядер As в условиях солид-эффекта

Примесь As в Si приводит к возникновению мелкого донорного уровня вблизи каждого из минимумов зоны проводимости. В результате сильного орбитально-долинного взаимодействия основным уровнем оказывается симметричное по долинам состояние, которое с учетом спина двукратно вырождено. Спин электрона в кремнии равен 1/2, а спин ядра мышьяка — 3/2. Это означает, что во внешнем магнитном поле с учетом сверхтонкого взаимодействия возникнет 8 состояний, характеризующихся различными проекциями спина электрона и спина ядра на направление внешнего магнитного поля. Гамильтониан, описывающий эту систему, имеет вид [5]

$$H = -g_e \mu_B S_z B_0 + g_n \mu_N I_z B_0 + ASI. \quad (1)$$

Здесь \mathbf{S} и \mathbf{I} — спиновые операторы электрона и ядра соответственно, B_0 — величина магнитной индукции внешнего магнитного поля, направленного вдоль z , g_e и g_n — абсолютные величины g -факторов электрона и ядра, μ_B и μ_N — магнетоны Бора и ядра, $A = 198.35$ МГц — постоянная сверхтонкого взаимодей-

ствия для атомов As^{75} [5]. Слагаемое $g_n \mu_N I_z B_0$ описывает расщепление уровней ядерного спина в поле и приводит к равновесной поляризации ядер, однако вследствие малости величины ядерного магнетона Бора эта поляризация мала во всех изученных полях и температурах и поэтому не учитывается. ASI описывает сверхтонкое взаимодействие между спином электрона и ядерным спином, значение A для всех мелких примесей значительно меньше, чем расщепление уровней электронного спина в поле B_0 и учитывается теорией возмущений по отношению к основному члену: $g_e \mu_B S_z B_0$.

Энергетическое расположение уровней приведено на рис. 1 и аналогично схеме уровней в работах [5,8]. Для определения величины солид-эффекта в данной работе будет рассчитана степень динамической поляризации при накачке в запрещенные флип-флоп переходы P_{23}, P_{45}, P_{67} . Вероятности переходов с сохранением проекции спина ядра одинаковые (вертикальные линии на рис. 1), а вероятности переходов между состояниями с изменением проекции спинов электрона и ядра зависят от величины проекции спина ядра. Как показано в работе [5], вероятность перехода $5 \rightarrow 4$ относится к вероятностям переходов $3 \rightarrow 2$ и $7 \rightarrow 6$ как 4/3 (соотношение для времен релаксации — обратное). Для расчета количества центров с различными проекциями спинов электрона и ядра необходимо составить систему из 8 кинетических уравнений, аналогичную системе из работы [8]:

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{N}_1 \tau_s = -\frac{N_1}{1+\mu} + \frac{\mu}{1+\mu} N_2, \\ \dot{N}_2 \tau_s = \frac{N_1}{1+\mu} - \left[\frac{\mu}{1+\mu} \left(1 + \frac{\tau_s}{\tau_x} \right) + P_{23} \tau_s \right] N_2 + \left[\frac{\tau_s}{\tau_x} \frac{1}{1+\mu} + P_{23} \tau_s \right] N_3, \\ \dot{N}_3 \tau_s = \left[\frac{\mu}{1+\mu} \frac{\tau_s}{\tau_x} + P_{23} \tau_s \right] N_2 - \left[\frac{1 + \frac{\tau_s}{\tau_x}}{1+\mu} + P_{23} \tau_s \right] N_3 + \frac{\mu}{1+\mu} N_4, \\ \dot{N}_4 \tau_s = \frac{N_3}{1+\mu} - \left[\frac{\mu}{1+\mu} \left(1 + \frac{4}{3} \frac{\tau_s}{\tau_x} \right) + P_{45} \tau_s \right] N_4 + \left[\frac{4}{3} \frac{\tau_s}{\tau_x} \frac{1}{1+\mu} + P_{45} \tau_s \right] N_5, \\ \dot{N}_5 \tau_s = \left[\frac{\mu}{1+\mu} \frac{4}{3} \frac{\tau_s}{\tau_x} + P_{45} \tau_s \right] N_4 - \left[\frac{1 + \frac{4}{3} \frac{\tau_s}{\tau_x}}{1+\mu} + P_{45} \tau_s \right] N_5 + \frac{\mu}{1+\mu} N_6, \\ \dot{N}_6 \tau_s = \frac{N_5}{1+\mu} - \left[\frac{\mu \left(1 + \frac{\tau_s}{\tau_x} \right)}{1+\mu} + P_{67} \tau_s \right] N_6 + \left[\frac{\tau_s}{\tau_x} \frac{1}{1+\mu} + P_{67} \tau_s \right] N_7, \\ \dot{N}_7 \tau_s = \left[\frac{\mu}{1+\mu} \frac{\tau_s}{\tau_x} + P_{67} \tau_s \right] N_6 - \left[\frac{1 + \frac{\tau_s}{\tau_x}}{1+\mu} + P_{67} \tau_s \right] N_7 + \frac{\mu}{1+\mu} N_8, \\ \dot{N}_8 \tau_s = -\frac{\mu}{1+\mu} N_8 + \frac{N_7}{1+\mu}. \end{array} \right. \quad (2)$$

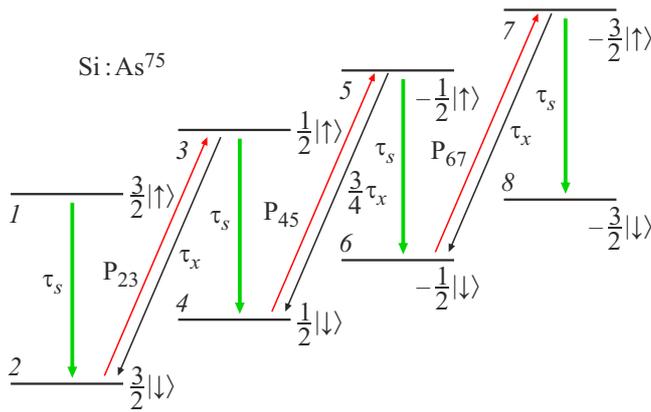


Рис. 1. Диаграмма спиновых подуровней As⁷⁵ в сильных магнитных полях. Зеленые линии представляют переходы при неизменном значении проекции ядерного спина, красные линии представляют кросс-переходы. (Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи).

Здесь N_i — число примесей в i -ом состоянии, P_{lm} — интенсивность вынужденных переходов для каждой пары линий,

$$\mu = \exp(-g_e \mu_B B_0 / kT),$$

где k — постоянная Больцмана, τ_s и τ_x — времена релаксации спина и кросс-переходов $3 \rightarrow 2$ и $7 \rightarrow 8$ соответственно. Уравнения (2) написаны из условия, что сумма всех N_i — постоянная величина, равная полному числу атомов мышьяка N . В отсутствие накачки $P_{ij} = 0$ и кросс-релаксации $\tau_x^{-1} = 0$ система разбивается на четыре независимые подсистемы уравнений, и в каждой из них равновесие устанавливается независимо от остальных. Кросс-релаксация приводит к тому, что на временах $t \gg \tau_x \gg \tau_s$ термодинамическое равновесие устанавливается между состояниями с различной проекцией ядерного спина. Значение среднего ядерного спина \mathcal{P} можно определить как отношение числа примесей, имеющих определенное значение проекции ядерного спина, к общему числу примесей в системе:

$$\mathcal{P} = \frac{\frac{3}{2} [N_1 + N_2 - N_7 - N_8] + \frac{1}{2} [N_3 + N_4 - N_5 - N_6]}{N}. \quad (3)$$

В стационарных условиях $t \gg \tau_x \gg \tau_s$ при накачке в один из переходов выражения для ядерной поляризации \mathcal{P}_{lm} принимают вид:

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_{23} &= -\frac{3}{2} \frac{P_{23} \tau_x (1 - \mu^2)}{4\mu + P_{23} \tau_x (\mu^2 + 4\mu + 3)}, \\ \mathcal{P}_{45} &= -\frac{P_{45} \tau_x 3(1 - \mu^2)}{8\mu + P_{45} \tau_x 3(1 + \mu)^2}, \\ \mathcal{P}_{67} &= -\frac{3}{2} \frac{P_{67} \tau_x (1 - \mu^2)}{4\mu + P_{67} \tau_x (3\mu^2 + 4\mu + 1)}. \end{aligned}$$

Из этих выражений можно увидеть, что наибольшее значение ядерной поляризации достигается при $P_{lm} \tau_x \gg \mu$

и $\mu \ll 1$, эти условия реализуются при больших магнитных полях, когда заселенности спиновых подуровней электрона значительно различаются. При этом величины ядерной поляризации для каждой из линий накачки можно оценить как

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_{23} &= -\frac{3}{2} \frac{P_{23} \tau_x}{3P_{23} \tau_x + 4\mu} \approx -\frac{1}{2}, \\ \mathcal{P}_{45} &= -\frac{3P_{45} \tau_x}{3P_{45} \tau_x + 8\mu} \approx -1, \\ \mathcal{P}_{67} &= -\frac{3}{2} \frac{P_{67} \tau_x}{P_{67} \tau_x + 4\mu} \approx -\frac{3}{2}. \end{aligned}$$

В дальнейшем при рассмотрении солид-эффекта будем рассчитывать зависимость степени ядерной поляризации \mathcal{P}_{23} от времени и интенсивность ЭПР линий с накачкой P_{23} , поскольку именно этот случай экспериментально исследован в работе [5].

Чтобы найти изменение со временем населенностей $N_i(t)$, необходимо решить систему уравнений (2) с учетом начальных условий (зависящих от условий эксперимента) и накачки в переход $2 \rightarrow 3$, которая начинается в момент времени $t = 0$. При произвольных значениях параметров решить эту задачу сложно, однако в случае, когда время спиновой релаксации электрона τ_s на несколько порядков меньше времени релаксации кросс-перехода τ_x , можно найти решение (2) в линейном по параметру τ_s/τ_x приближении. Будем искать решение для $N_i(t)$ в виде

$$N_i(t) = n_i \exp(-\lambda t / \tau_s)$$

и введем обозначения

$$\alpha = 1/(1 + \mu), \quad \beta = \mu/(1 + \mu).$$

Собственные числа λ определяют времена релаксации для населенностей N_i , и, так как система (2) состоит из восьми уравнений, она даст 8 собственных значений λ . Поскольку сумма всех N_i сохраняется, одно из них должно равняться нулю. Чтобы найти эти значения, необходимо учесть, что при отношении $\tau_s/\tau_x \rightarrow 0$ система разбивается на 4 независимые подсистемы, каждая из которых описывает устанавливающееся равновесие между состояниями с разными проекциями спина электрона и одинаковыми проекциями ядерного спина. При конечном, но малом отношении τ_s/τ_x стационарное распределение между парами состояний с одинаковыми проекциями спина ядра достигается за достаточно короткое время τ_s , а за время, определяемое τ_x , устанавливается термодинамическое равновесие между всеми 8 уровнями. При этом на временах, больших чем τ_s , разность заселенностей спиновых подуровней электрона будет зависеть только от заселенности состояния с определенным значением проекции ядерного спина. Для расчета величин n_i удобно перейти к новым переменным: $n_{12} = n_1 + n_2$, $Q_{12} = -\alpha n_1 + \beta n_2$ и т.д. Тогда в

линейном приближении по τ_s/τ_x уравнения (2) для n_{ij} и Q_{ij} разделяются, и для n_{ij} мы получим:

$$\begin{cases} -\lambda \frac{\tau_x}{\tau_s} n_{12} + \alpha(\beta + P_{23}\tau_x)n_{12} - \beta(\alpha + P_{23}\tau_x)n_{34} = 0, \\ -\lambda \frac{\tau_x}{\tau_s} n_{34} - \alpha(\beta + P_{23}\tau_x)n_{12} \\ \quad + \beta\left(\frac{7}{3}\alpha + P_{23}\tau_x\right)n_{34} - \frac{4}{3}\alpha\beta n_{56} = 0, \\ -\lambda \frac{\tau_x}{\tau_s} n_{56} + \frac{7}{3}\alpha\beta n_{56} - \frac{4}{3}\alpha\beta n_{34} - \alpha\beta n_{78} = 0, \\ -\lambda \frac{\tau_x}{\tau_s} n_{78} + \alpha\beta n_{78} - \alpha\beta n_{56} = 0. \end{cases} \quad (4)$$

В этом же приближении уравнения для Q_{ij} имеют подобный вид, но для них собственные значения $\lambda = 1$ с точностью до величины порядка τ_s/τ_x . Система уравнений (4) описывает изменение населенности пар состояний с одинаковыми проекциями ядерного спина, а для расчета временной зависимости сигналов ЭПР необходимо определить разницы уровней населенностей внутри каждой пары $N_{i+1} - N_i$. На временах, превышающих значение τ_s , $Q_{ij} = 0$, что позволяет нам выразить $N_{i+1} - N_i$ через $N_{ij} = N_i + N_j$. Зависимость относительных величин сигналов ЭПР для каждой из пар уровней определяются следующим образом:

$$\begin{aligned} N_2 - N_1 &= \alpha(1 - \mu)N_{12}, & N_4 - N_3 &= \alpha(1 - \mu)N_{34}, \\ N_6 - N_5 &= \alpha(1 - \mu)N_{56}, & N_8 - N_7 &= \alpha(1 - \mu)N_{78}. \end{aligned}$$

Для расчета зависимостей N_{ij} от времени удобно вернуться от алгебраической системы (4) к более наглядной форме дифференциальных кинетических уравнений:

$$\begin{cases} \dot{N}_{12}T_x + N_{12}(1 + P_{23}\tau_x/\beta) - N_{34}(1 + P_{23}\tau_x/\alpha) = 0, \\ \dot{N}_{34}T_x - N_{12}(1 + P_{23}\tau_x/\beta) \\ \quad + N_{34}(7/3 + P_{23}\tau_x/\alpha) - 4/3N_{56} = 0, \\ \dot{N}_{56}T_x - 4/3N_{34} + 7/3N_{56} - N_{78} = 0, \\ \dot{N}_{78}T_x - N_{56} + N_{78} = 0, \end{cases} \quad (5)$$

где $T_x = \tau_x(1 + \mu)^2/\mu$.

Система (5) показывает, что время перехода в стационарное состояние отличается от введенного микроскопического параметра τ_x и не сводится к параметру T_x , поскольку коэффициенты при различных N_{ij} зависят от отношения $P_{23}\tau_x$. При низких температурах, когда $\mu \ll 1$, время T_x , определяющее процесс установления равновесия в ядерной подсистеме в отсутствие накачек, оказывается значительно длиннее времени кросс-релаксации. Такое колоссальное удлинение времени объясняется тем, что в исходной системе (2) при $\mu = 0$ значение параметра $\lambda = 0$ четырехкратно вырождено. Это означает, что отношение заселенностей подуровней

в стационарном состоянии будет зависеть от начальных условий и возможна ненулевая равновесная поляризация ядер (если в начальный момент времени такая поляризация существовала). При конечном μ стационарным является только одно состояние, в котором средний ядерный спин равен нулю. Для того чтобы система пришла к нему, согласно рис. 1 и системе (2), необходимы переходы из состояний со спином электрона „вниз“ в состояние со спином „вверх“, но такой переход пропорционален числу фононов, которое при низких температурах пропорционально μ . Это означает, что система будет приходить к равновесному состоянию за время, пропорциональное τ_x/μ . В присутствии накачки характерные времена установления стационарного состояния будут уменьшаться. При $\mu \ll 1$ параметром, уменьшающим времена релаксации, будет отношение $P_{23}\tau_x/\mu$. Решение системы (5) можно записать так:

$$\begin{aligned} N_{12}(t) &= n_{34}^{(0)} \frac{1 + \frac{P_{23}\tau_x}{\alpha}}{1 + \frac{P_{23}\tau_x}{\beta}} + \sum_{k=1,2,3} n_{34}^{(k)} \frac{1 + \frac{P_{23}\tau_x}{\alpha}}{1 - t_k + \frac{P_{23}\tau_x}{\beta}} e^{-\lambda_k t}, \\ N_{34}(t) &= n_{34}^{(0)} + \sum_{k=1,2,3} n_{34}^{(k)} e^{-\lambda_k t}, \\ N_{56}(t) &= n_{34}^{(0)} \\ &+ \sum_{k=1,2,3} n_{34}^{(k)} \frac{\frac{3}{4}t_k^2 - t_k\left(\frac{5}{2} + \frac{3}{4}\frac{P_{23}\tau_x}{\alpha\beta}\right) + 1 + \frac{P_{23}\tau_x}{\beta}}{1 - t_k + \frac{P_{23}\tau_x}{\beta}} e^{-\lambda_k t}, \\ N_{78}(t) &= n_{34}^{(0)} \\ &+ \sum_{k=1,2,3} n_{34}^{(k)} \frac{\frac{3}{4}t_k^2 - t_k\left(\frac{5}{2} + \frac{3}{4}\frac{P_{23}\tau_x}{\alpha\beta}\right) + 1 + \frac{P_{23}\tau_x}{\beta}}{(1 - t_k)(1 - t_k + \frac{P_{23}\tau_x}{\beta})} e^{-\lambda_k t}, \end{aligned} \quad (6)$$

где $\lambda_k = \alpha\beta t_k/\tau_x$ и t_k — решения кубического уравнения:

$$\begin{aligned} 3t^3 - t^2\left(20 + \frac{3}{\alpha\beta}P_{23}\tau_x\right) + t\left(36 + \frac{2(5 + 2\alpha)}{\alpha\beta}P_{23}\tau_x\right) \\ - \left(16 + \frac{4(1 + 2\alpha)}{\alpha\beta}P_{23}\tau_x\right) = 0, \end{aligned}$$

а постоянные $n_{34}^{(0)}$ и $n_{34}^{(k)}$ находятся из начальных условий.

3. Сравнение результатов теории и экспериментов

В работе [5] проведены экспериментальные исследования динамической поляризации спинов ядер As в Si в режиме эффекта Оверхаузера и солид-эффекта при сильных магнитных полях и низких температурах. В таких условиях заселенности электронных подуровней с противоположными проекциями спина электронов

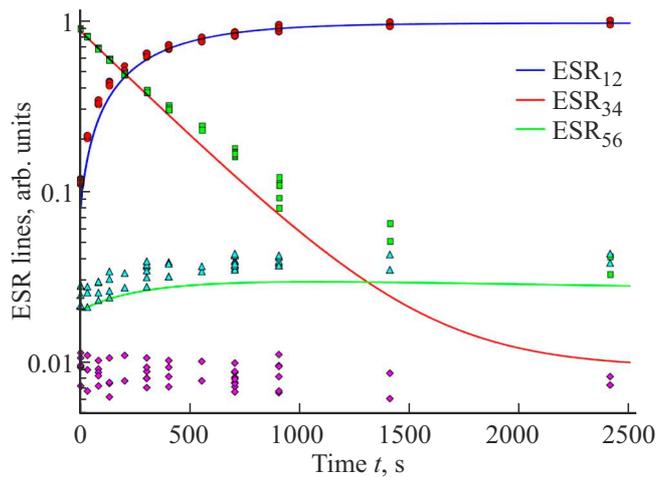


Рис. 2. Зависимость величины ЭПР сигнала от времени при накачке $P_{43}\tau_x$ для эффекта Оверхаузера при $P_{43}\tau_x/\mu = 100$.

значительно отличаются, параметр $\mu \ll 1$. Вначале проанализируем эффект Оверхаузера, используя результаты [8], с учетом коэффициента $4/3$ в вероятностях кросс-релаксационных переходов (в работе [8] этим различием пренебрегалось). Как отмечалось в работах [5,8], наибольшая стационарная степень динамической поляризации наблюдается при накачке линии 2, так что далее именно этот случай и будет разобран. Для наблюдения эффекта Оверхаузера в работе [5] вначале создавалась ситуация, когда ядра были практически полностью поляризованы в состоянии $I_z = 1/2$, и затем включалась накачка в переход $4 \rightarrow 3$ и изучалась зависимость сигнала ЭПР на линиях $1 \rightarrow 2$ и $3 \rightarrow 4$ от времени накачки. В результате динамической поляризации с течением времени интенсивность линии $1 \rightarrow 2$ возрастала, а линии $3 \rightarrow 4$ уменьшалась до нуля, таким образом ядра оказались преимущественно поляризованы в состоянии $I_z = 3/2$.

На рис. 2 приведены результаты сравнения расчетов (пунктирные линии) и эксперимента [5] (квадратики, треугольники и кружки) зависимости заселенностей и степени поляризации ядер от времени. При рассмотрении эффекта Оверхаузера значения параметров τ_x и $P_{43}\tau_x$ подбирались так, чтобы с результатами [5] совпадали: a — точка пересечения синей и красной кривых, соответствующих переходам $1 \rightarrow 2$ и $3 \rightarrow 4$ (N_{12}, N_{34} и N_{56}); b — уровни сигналов для переходов $1 \rightarrow 2$, $3 \rightarrow 4$ и $5 \rightarrow 6$ (N_{12}, N_{34} и N_{56}) в стационарном случае, т.е. уровни плато, на которые они выходят при временах $t > \tau_x$; c — точка касания красной и зеленой кривых, соответствующих сигналам $3 \rightarrow 4$ и $5 \rightarrow 6$ (N_{34} и N_{56}). Оказалось, что при небольшом изменении параметра $P_{43}\tau_x$ точки пересечения кривых и момент выхода на плато смещались незначительно. Изменение параметра τ_x влияло только на наклон кривых в целом и, соответственно, на момент времени выхода кривых на плато: чем больше времени необходимо системе для насыщения, тем медленнее кривая меняет свое поло-

жение вдоль вертикальной оси графика. В результате сравнения с экспериментом была определена величина времени кросс-релаксации $\tau_x \approx 8.5$ с, при значении $\mu \approx 2.36 \cdot 10^{-4}$, заметим, что время установления стационарного состояния зависит от интенсивности накачки, без накачки термодинамическое равновесие устанавливается через более чем 50 ч.

При рассмотрении динамической поляризации ядер при солид-эффекте [5] накачка происходила между состояниями 2 и 3. Такие переходы менее вероятны, чем переходы с сохранением проекции спина ядра, но более вероятны, чем переходы, в которых суммарная проекция спина ядра и спина электрона меняется. Образец приготавливался в поляризованном состоянии с $I_z = 3/2$, и изучались сигналы ЭПР на линиях $1 \rightarrow 2$ и $3 \rightarrow 4$ в зависимости от длительности накачки перехода $2 \rightarrow 3$. Параметром, определяющим эффективность накачки, является параметр $P_{23}\tau_x$, а не $P_{43}\tau_x$, как в случае эффекта Оверхаузера.

Сравнение рассчитанных (6) зависимостей сигналов ЭПР от времени с экспериментальными [5] для солид-эффекта производилось аналогично случаю с эффектом Оверхаузера и отображено на рис. 3, но необходимо было дополнительно найти масштабный коэффициент для вертикальной оси графика, чтобы учесть в явном виде сохранение полного числа центров N . При этом было принято во внимание, что на рисунке в работе [5] отсутствует явный переход системы в стационарное состояние, так что возможности сравнить сигналы в режиме насыщения не было. Поведение кривых в зависимости от параметров τ_x и P_{23} аналогично случаю эффекта Оверхаузера. В результате из сравнения расчетов с данными по солид-эффекту было получено время $\tau_x \approx 9$ с. В этом случае время установления стационар-

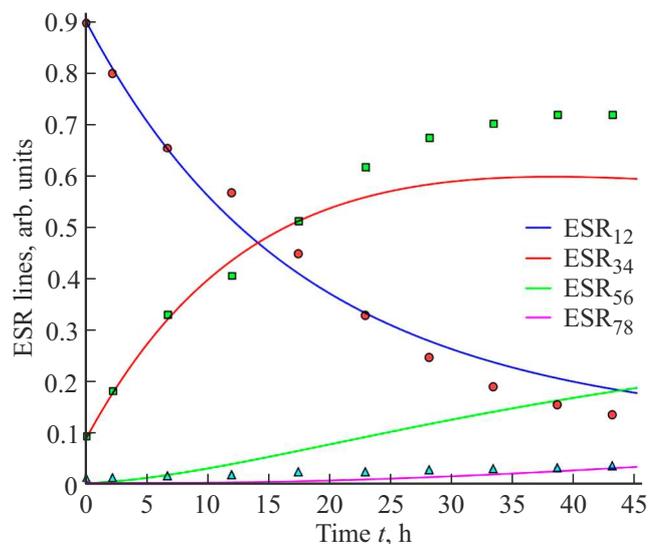


Рис. 3. Зависимость величины ЭПР сигнала от времени при накачке P_{23} для солид-эффекта, $P_{23}\tau_x/\mu = 4$. Сплошные линии — расчет по формулам (6), квадраты, кружки и треугольники — эксперимент.

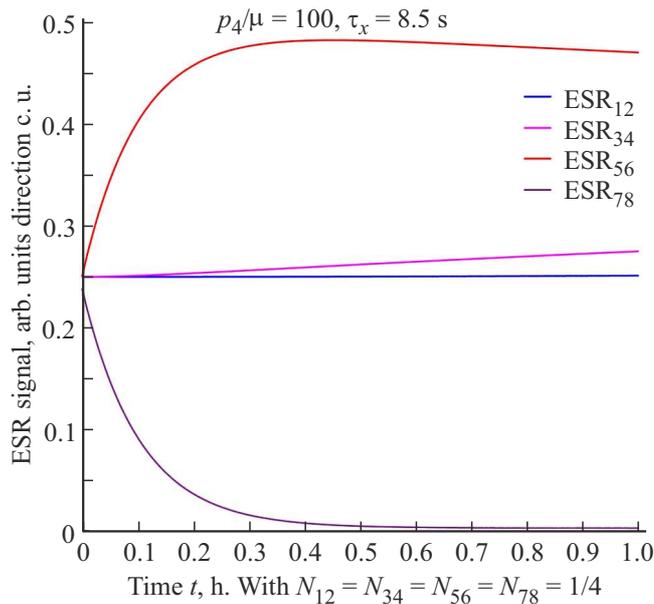


Рис. 4. Зависимость сигналов ЭПР на каждой из линий от времени при накачке $P_{87}/\mu = 100$.

ного состояния также зависит от интенсивности накачки и при выбранных параметрах составляет ~ 20 ч.

Кроме приведенных выше экспериментальных данных, авторы [5] провели измерения сигналов ЭПР всех четырех линий при последовательной накачке переходов $8 \rightarrow 7$, $6 \rightarrow 5$ и $4 \rightarrow 3$ в течение 2000 с каждый. Это время намного длиннее времени спиновой релаксации электронов, но существенно короче времени установления стационарного состояния (согласно данным по солид-эффекту — 20 ч). В результате, если изначально заселенность всех спиновых подуровней ядра была одинаковой и интенсивности линий ЭПР одинаковые, при накачке в линию через 2000 с интенсивность линий $5 \rightarrow 6$ и $3 \rightarrow 4$ не изменилась, линия $7 \rightarrow 8$ практически исчезла, а интенсивность линии $5 \rightarrow 6$ увеличилась в 2 раза. Это означает, что уровни 7 и 8 практически опустели, а все электроны перераспределились между уровнями 5 и 6.

На рис. 4 приведены рассчитанные нами изменения интенсивностей линий со временем при использовании полученных в данной работе параметров для этого случая. Видно, что результаты расчетов хорошо описывают результаты [5], поскольку действительно за время 2000 с произошло увеличение сигнала на линии $5 \rightarrow 6$ и исчезла линия $7 \rightarrow 8$. Нами проведены расчеты случаев накачки в линии $6 \rightarrow 5$ и $4 \rightarrow 3$ и также достигнуто хорошее согласие с экспериментом.

4. Заключение

В работе проведено детальное сравнение результатов теории и эксперимента эффекта динамической поляризации в Si:As. Определен ключевой параметр, время

кросс-релаксации τ_x . Это время оказалось порядка 10 с и его величина, рассчитанная из данных по эффекту Оверхаузера, почти не отличается от значения, извлеченного из данных по солид-эффекту. Рассчитаны ключевые параметры $P_{23}\tau_x = 1.1 \cdot 10^{-3}$ и $P_{43}\tau_s = 2.4 \cdot 10^{-2}$, они оба намного превосходят параметр μ , но при этом остаются много меньше единицы, т.е. насыщение сигнала ЭПР не достигается. Значение τ_x порядка 1 с наблюдалось и для Si:P [7], где было предположено, что основным механизмом кросс-релаксации является смешивание состояний с разными проекциями спина ядра сверхтонким взаимодействием. Спиновая релаксация в Si для локализованных на донорах электронов определяется прямыми переходами с изменением проекции спина электрона при взаимодействии с длинноволновыми акустическими фононами [9]. При низких температурах ($g_e\mu_B B_0/kT \gg 1$) τ_s не зависит от температуры, но зависит от величины внешнего магнитного поля и, согласно [9,10], составляет $10^{-7}-10^{-8}$ с. Тогда и время τ_x не зависит от температуры и превосходит τ_s в $(g_e\mu_B B_0/A)^2 \approx 10^6$ раз. Это не противоречит результатам данной работы, однако для однозначного определения механизма кросс-релаксации необходимы исследования эффекта динамической поляризации при различных магнитных полях и температурах.

Благодарности

Авторы признательны Л.С. Власенко за плодотворные дискуссии и детальные пояснения экспериментальных данных.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке проекта РФФ № 23-12-00205.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Y. Ishikawa, Y. Fujii, A. Fukuda, Y. Koizumi, T. Omija, T. Oida, H. Yamamori, A. Matsubara, S. Mitsudo, S. Lee, J. Järvinen, S. Vasiliev. Appl. Magnetic Res., **52**, 305 (2021).
- [2] D.B. Bucher, D.R. Glenn, H. Park, M.D. Lukin, R.L. Walsworth. Phys. Rev. X, **10**, 021053 (2020).
- [3] D. Shimon, K.A. Cantwell, L. Joseph, E.Q. Williams, Z. Peng, S. Takahashi, C. Ramanathan. J. Phys. Chem. C, **126**, 17777 (2022).
- [4] J. Järvinen, D. Zvezdov, J. Ahokas, S. Sheludiakov, L. Lehtonen, S. Vasiliev, L. Vlasenko, Y. Ishikawa, Y. Fujii. Phys. Chem. Chem. Phys., **22**, 10227 (2020).
- [5] J. Järvinen, J. Ahokas, S. Sheludiakov, O. Vainio, D. Zvezdov, L. Lehtonen, L. Vlasenko, S. Vasiliev. Appl. Magnetic Res., **48**, 473 (2017).

- [6] J. Järvinen, J. Ahokas, S. Sheludyakov, O. Vainio, L. Lehtonen, S. Vasiliev, D. Zvezdov, Y. Fujii, S. Mitsudo, T. Mizusaki, M. Gwak, SangGap Lee, Soonchil Lee, L. Vlasenko. *Phys. Rev. B*, **90**, 214401 (2014).
- [7] W. Knap, N. Averkiev, M. Lifshits, D. But. *Terahertz enhancement of dynamic nuclear polarization in semiconductors*. In: RJUSE-TeraTech2021 (2021).
- [8] M.B. Lifshits, N.S. Averkiev. *Solid State Commun.*, **371**, 115276 (2023).
- [9] Hiroshi Hasegawa. *Phys. Rev.*, **118**(6), 1523 (1960).
- [10] Laura M. Roth. *Phys. Rev.*, **118** (6), 1534 (1960).

Редактор Г.А. Оганесян

Parameters of dynamic polarization of As nuclei in silicon at low temperatures and strong magnetic fields

M.B. Lifshits, V.A. Grabar, N.S. Averkiev

loffe Institute,
194021 St. Petersburg, Russia

Abstract The paper theoretically describes the solid effect in the Si:As structure in ESR conditions at low temperatures and in strong magnetic fields. A quantitative comparison of the results of calculating the dynamic polarization of As nuclei in silicon by the Overhauser mechanism and the solid effect with experimental data has been carried out. A good agreement between theory and experiment was demonstrated and the key parameter of the effects, the time of cross-relaxation transitions, was determined which turned out to be approximately 10 s for the As atom.