

УДК 538-22

©1995

## ПОЛЯРИЗОВАННАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ $CdMnTe$ ВО ВНЕШНЕМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ

*А.В.Кудинов, Ю.Г.Курсаев, В.Н.Якимович*

Физико-технический институт им.А.Ф.Иоффе РАН, Санкт-Петербург  
(Поступила в Редакцию 6 июня 1994 г.)

Изучена индуцированная магнитным полем поляризация фотолюминесценции в полумагнитных полупроводниках  $Cd_{1-x}Mn_xTe$  с различным содержанием марганца. Показано, что при  $T = 2$  К в образцах с малым  $x$  ( $\leq 0.2$ ) поляризация люминесценции определяется тепловым разбросом магнитных моментов поляронов по направлению, а в случае  $x \geq 0.2$  доминирующую роль играет локальная анизотропия спинового стекла. Проведен теоретический расчет зависимости степени поляризации от магнитного поля в обоих случаях, причем магнитная анизотропия феноменологически описывалась введением локальных замороженных полей. Сравнение экспериментальных зависимостей с результатами расчета позволило определить величины магнитных моментов поляронов в парамагнитных образцах и локальных обменных полей в спиновых стеклах. Температурная зависимость поляризации, в которой проявляется фазовый переход спиновое стекло-парамагнетик, подтверждает интерпретацию эксперимента.

1. Среди полупроводниковых материалов полумагнитные полупроводники (ПМП) выделяются яркими магнитными и магнитооптическими свойствами [1]. Одним из таких свойств является переход ПМП при низких температурах в фазу спинового стекла. Магнитная восприимчивость в точке фазового перехода  $T_f$  имеет особенность и при  $T < T_f$  зависит от предыстории образца [2]. Сходная особенность наблюдается при измерении фарадеевского вращения [3], что и неудивительно, так как угол поворота плоскости поляризации света пропорционален намагниченности образца.

Спин-стекольные свойства ПМП проявляются в виде оптически индуцированной поляризации люминесценции [4,5]. В этих экспериментах фактически изучалась поляризация люминесценции магнитных поляронов. В то же время температурные зависимости энергии магнитного полярона не обнаруживают особенностей в районе  $T_f$  [6]. Поскольку указанные проявления спин-стекольных свойств являются макроскопическими, а магнитный полярон — квазичастица с микроскопически малым размером локализации, актуален вопрос о том, в какой мере спиновое упорядочение при фазовом переходе влияет на свойства полярона.

Измерение поляризации люминесценции является удобным методом изучения выстраивания поляронов во внешнем магнитном поле [7].

Существенно то, что высокая чувствительность поляризационных измерений позволяет использовать весьма слабые магнитные поля, не влияющие на внутреннюю структуру полярона.

Целью настоящей работы было исследование основных особенностей индуцированной внешним магнитным полем поляризации фотолюминесценции (ФЛ)  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  в зависимости от содержания марганца  $x$ . При этом были изучены два случая: а) поляризация определяется тепловым разбросом поларонов по направлению («парамагнитная область») и б) доминирующую роль играет локальная анизотропия спинового стекла («спин-стекляная область»). В последнем случае замороженные обменные поля препятствуют выстраиванию поларонов вдоль внешнего поля.

2. Исследовалась поляризация люминесценции локализованных экситонов в кристаллах  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  ( $x = 0.005, 0.08, 0.15, 0.18, 0.3, 0.4$ ). Эксперименты проводились в геометриях Фарадея и Фойгта. Образцы помещались в гелиевый криостат ( $T = 2, 4.2 \div 25$  K). Магнитное поле создавалось находившимся вне криостата электромагнитом, поэтому изменение геометрии эксперимента сводилось к повороту магнита и вносило минимум дополнительных искажений, что позволяет сопоставлять результаты экспериментов разной геометрии.

Фотовозбуждение во всех случаях было межзонным ( $\hbar\omega > E_g$ ) и осуществлялось гелий-неоновым лазером (для  $x = 0.005 \div 0.18$ ) и аргоновым лазером (для  $x = 0.18, 0.3, 0.4$ ). Контрольные измерения поляризации ФЛ ( $x = 0.18$ ) при возбуждении аргоновым лазером не выявили существенных отличий от случая He-Ne возбуждения.

В ряде экспериментов была отмечена зависимость поляризации люминесценции от плотности оптического возбуждения, что, по-видимому, можно приписать разогреву ионной спиновой системы при спиновой релаксации фотовозбужденных носителей. Для устранения этого эффекта плотность оптического возбуждения поддерживалась минимальной — на уровне  $\leq 1 \text{ W/cm}^2$  (при этом поляризация люминесценции перестает зависеть от плотности возбуждения).

ФЛ регистрировалась двухканальной схемой счета фотонов. Разделение поляризованного света по каналам осуществлялось при помощи фотоупругого модулятора поляризации [8]. Для измерения степени линейной поляризации ФЛ оптическая схема дополнялась четвертьволновой пластинкой (в анализе).

3. Магнитополевые зависимости степени циркулярной поляризации ФЛ  $\rho_c = (I_+ - I_-)/(I_+ + I_-)$ , где  $I_+$  и  $I_-$  — интенсивности ФЛ, поляризованной по правому и левому кругу соответственно, измерялись в геометрии Фарадея. Характер этих зависимостей одинаков для всех составов твердого раствора: линейный рост поляризации в малых полях с последующей тенденцией к насыщению. Сосредоточим внимание на области линейного роста  $\rho_c(H)$ , на величине наклона  $\vartheta = d\rho_c/dH|_{H \rightarrow 0}$ . С ростом  $x$  от 0.005 до 0.08 наклон растет, от 0.08 до 0.15 почти не меняется, при  $x = 0.18$  уже заметно уменьшается, при  $x = 0.3$  падает еще в три раза и к  $x = 0.4$  уменьшается еще в два раза (рис. 1-3). Качественно эта картина соответствует ходу магнитополевых зависимостей спинового расщепления состояний свободного экситона при разных  $x$  [1]. Однако оценка показывает, что ожидаемая «тепловая» поляризация экситонов, связанная с бoльцмановским заселением расщепленных

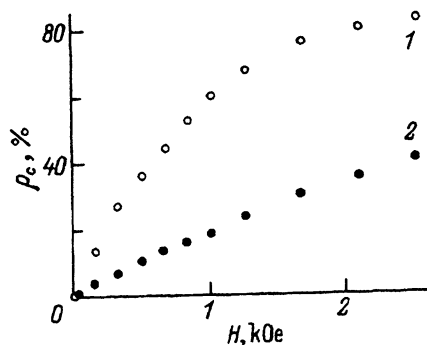


Рис. 1. Магнитополевые зависимости степени циркулярной поляризации фотолуминесценции  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  при температуре 2 К.

$x$ : 1 — 0.18, 2 — 0.3.

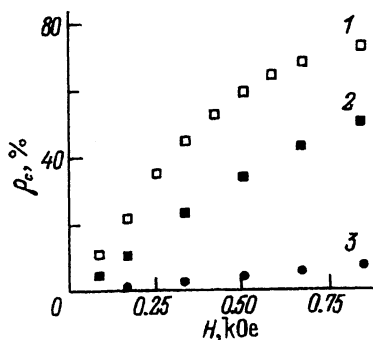


Рис. 2. То же, что на рис. 1.

$x$ : 1 — 0.08 ( $T = 2$  К), 2 — 0.08 ( $T = 4.2$  К), 3 — 0.4 ( $T = 2$  и 4.2 К).

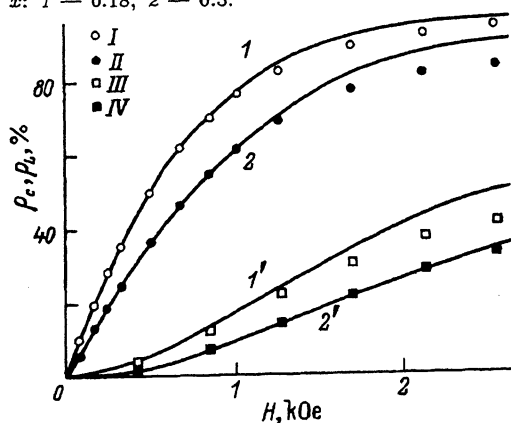


Рис. 3. Экспериментальные и расчетные зависимости степени поляризации люминесценции  $\text{Cd}_{0.85}\text{Mn}_{0.15}\text{Te}$  от магнитного поля при температурах  $T = 2$  (1, 1') и 4.2 К (2, 2').

I, II — циркулярная поляризация, геометрия Фарадея, III, IV — линейная поляризация, геометрия Фойгта. Сплошные кривые — расчет по (ПЗ) и (П4).

обменным полем экситонных состояний, существенно превышает наблюдаемую экспериментально поляризацию. Например, для  $x = 0.08$  наблюдаемая в поле 50 Ое поляризация составляет около 6%, в то время как оценка дает для  $x = 0.10$  около 40%; в поле 100 Ое для  $x = 0.3$  поляризация — около 2%, а оценка дает более 25%. Этот результат, однако, не является неожиданным, так как подобное рассмотрение совершенно игнорирует магнитополяронный эффект, в то время как энергия экситонного магнитного полярона по крайней мере в области слабых внешних полей превышает другие энергетические параметры задачи — температуру и экситонное спиновое расщепление.

Учет влияния магнитополяронного эффекта на поляризацию ФЛ легче всего тогда, когда спиновое расщепление экситонных состояний в магнитном поляроне много больше температуры. В этом случае экситон заселяет самое низкое по энергии  $\sigma$ -состояние и при рекомбинации излучает вдоль оси полярона циркулярно поляризованный свет. Слабое внешнее поле действует на поляроны как на монокристаллические магнитные диполи величиной в десятки магнетонов Бора. Величина наклона  $\vartheta$  при этом пропорциональна магнитной восприимчивости поляронов  $\chi_p$  (см. Приложение).

Резкое уменьшение  $\vartheta$  при переходе к большим  $x$  заслуживает особого внимания. В ситуации, когда основным фактором, препятствующим выстраиванию поляронов вдоль магнитного поля, являются тепловые колебания кристаллической решетки, уменьшение  $\vartheta$  может быть достигнуто (при фиксированной температуре) за счет уменьшения среднего магнитного момента полярона. Однако в области  $x = 0.2 \div 0.4$  энергия магнитного полярона не убывает [5,9] и нет оснований предполагать уменьшение среднего момента. Так, расчеты, проведенные Вольфом и Рам-Моханом для связанного на акцепторе магнитного полярона в CdMnTe [10], дают приблизительно постоянный момент полярона в этом диапазоне составов.

С другой стороны, ряд экспериментов указывает на наличие в полупроводниковых спиновых стеклах локальной анизотропии спиновой системы [4,11], проявления которой можно описывать, вводя понятие о замороженных обменных полях. Хаотически ориентированные локальные поля фиксируют поляронные моменты и, по-видимому, препятствуют их выстраиванию в направлении внешнего поля. В достаточно слабом внешнем поле  $H$ , не вызывающем изменения величины и ориентации локальных полей  $H_c$ , магнитные диполи будут выстраиваться в направлении суммарных полей  $H_s = H_c + H$ . В спиновых стеклах влияние локальных полей может превышать тепловой разброс поляронных моментов по направлению и таким образом определять величину  $\vartheta$ .

В пользу такой трактовки свидетельствует влияние температуры на  $\vartheta$ . В образцах с  $x \leq 0.08$  увеличение температуры от 2 до 4.2 К приводит к пропорциональному уменьшению  $\vartheta$ ; при  $x = 0.4$  такое изменение температуры не влияет на  $\vartheta$  (рис. 2).

Для образца с  $x = 0.3$  рост температуры от 2 до 4.2 К сопровождался даже некоторым ростом  $\vartheta$ . На рис. 4 приведена температурная зависимость  $\vartheta$  в интервале 2–25 К. Экспериментально измерялась температурная зависимость степени поляризации  $\rho_c$  при фиксированном магнитном поле, величина которого выбиралась таким образом, чтобы во всем температурном интервале не выходить за пределы линейного участка зависимости  $\rho(H)$ . Приведенная зависимость имеет отчетливо видимую особенность при  $T \approx 5.5$  К. Ход зависимости демонстрирует смену определяющего поляризацию фактора: от локальных полей в области низких температур к тепловому разбросу в области «высоких» ( $T > 5.5$  К) температур. Согласно литературным данным [2], температура фазового перехода для  $x = 0.3$   $T_f \approx 7$  К, так что, по-видимому, при отогреве образца тепловой разброс становится существенным фактором еще в спин-стекольной фазе. В противном случае особенностей в зависимости  $\vartheta(T)$  следовало бы ожидать в районе 7 К, причем мог

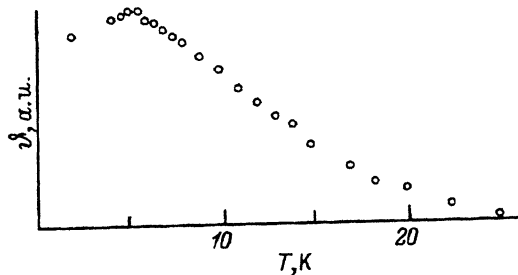


Рис. 4. Температурная зависимость параметра  $\vartheta$  в Cd<sub>0.7</sub>Mn<sub>0.3</sub>Te. Температура фазового перехода спиновое стекло-парамагнетик для данного состава около 7 К [2].

бы наблюдаться рост  $\vartheta$ . Наконец, незначительный рост  $\vartheta$  в интервале  $2 \div 5$  К можно приписать уменьшению или частичному разрушению локальных полей с ростом температуры. Таким образом, ход зависимости  $\vartheta(T)$  можно рассматривать как оптическое проявление фазового перехода спиновое стекло-парамагнетик.

В геометрии Фойгта выстраивание поляронов вдоль внешнего магнитного поля должно проявляться в виде линейно поляризованной люминесценции, что и подтверждается экспериментом (рис. 3). Плоскость поляризации перпендикулярна магнитному полю. Характер зависимости степени линейной поляризации  $\rho_L = (I_Y - I_Z)/(I_Y + I_Z)$  от  $H$  и здесь единообразен для всех исследованных составов: сверхлинейный рост в малых полях и тенденция к насыщению с ростом поля. Полученные зависимости  $\rho_L(H)$  наряду с зависимостями  $\rho_c(H)$  могут служить для проверки адекватности изложенной модели.

На рис. 3 для одного из образцов проведено сравнение эксперимента с результатами теоретического расчета, изложенного в Приложении. При двух температурах сопоставлены зависимости  $\rho_c$  и  $\rho_L$  от  $H$ , измеренные в различных геометриях эксперимента. Расчет, проведенный по формулам (П3) и (П4), удовлетворительно описывает экспериментальные результаты. Отметим, что каждая пара экспериментальных зависимостей (кривые 1, 1' и 2, 2') описывается при единственном подгоночном параметре, который характеризует энергию взаимодействия полярона с внешним полем.

Из сравнения эксперимента с теорией удается извлечь величину магнитного момента полярона  $M$ . Например, при  $T = 2$  К  $M = 62 \mu_B$  для  $x = 0.08$  и  $M = 50 \mu_B$  для  $x = 0.15$ . Аналогичным образом, сравнивая эксперимент с расчетом для «спин-стекльной области», можно определить величину локального поля  $H_c$ : для образца с  $x = 0.3$   $H_c = 5.6$ , а с  $x = 0.4$   $H_c = 11.5$  кОе ( $T = 2$  К).

В заключение сформулируем основные выводы работы. Показано, что индуцированная магнитным полем поляризация люминесценции в CdMnTe определяется двумя факторами. В парамагнитной области выстраивание поляронов вдоль внешнего магнитного поля лимитируется тепловыми колебаниями решетки. Наряду с этим, в спиновых стеклах существенным фактором становится локальная анизотропия спиновой системы. Конкуренцию двух механизмов удастся проследить по температурной зависимости наклона  $\rho_c(H)$ .

Авторы признательны И.А.Меркулову и К.В.Кавокину за плодотворные обсуждения.

## ПРИЛОЖЕНИЕ

Рассчитаем  $\rho_c$  и  $\rho_L$  в зависимости от внешнего поля для случая теплового разброса поляронов по направлению и для модели замороженных полей. Большая величина поляронного магнитного момента делает возможным классическое рассмотрение задачи об ориентации поляронов. Пусть в лабораторной системе координат  $OXYZ$  в направлении  $Z$  приложено магнитное поле  $H$ . Рассмотрим полярон с магнитным моментом  $M$ , ось которого ориентирована произвольным образом. Свяжем с поляроном систему  $OX'Y'Z'$  так, чтобы ось полярона совпала с осью  $Z'$ , а ось  $X'$  выберем в плоскости  $XOZ$ . Экситон при этом можно рассматривать как излучатель, вектор поляризации которого  $e = \frac{1}{\sqrt{2}}(X' + iY')$ .

Введем следующие обозначения  $I_+$  и  $I_-$  — интенсивности света, поляризованного по правому и левому кругу соответственно;  $I_Y$  и  $I_Z$  — интенсивности света, поляризованного вдоль осей  $Y$  и  $Z$ ;  $\theta$  — угол между  $Z$  и  $Z'$ , а  $\varphi$  — угол между осью  $X$  и проекцией  $Z'$  на плоскость  $XOY$ . Преобразуя вектор поляризации к базису  $OXYZ$ , несложно показать, что для излучения вдоль оси  $Z$

$$I_+ \sim \frac{1}{4}(1 + \cos \theta)^2, \quad I_- \sim \frac{1}{4}(1 - \cos \theta)^2, \quad (\text{П1})$$

а для света, излученного вдоль  $X$ ,

$$I_Z \sim \frac{1}{2}(1 - \cos^2 \theta), \quad I_Y \sim \frac{1}{2}(\cos^2 \theta + \sin^2 \theta \cos^2 \varphi). \quad (\text{П2})$$

В модели теплового разброса вероятность обнаружить полярон, повернутый на угол  $\theta$  к оси  $Z$ , будет пропорциональна больцмановскому фактору  $\exp(MH \cos \theta/kT)$ . Усредняя теперь  $I_+$ ,  $I_-$ ,  $I_Z$  и  $I_Y$  по  $\theta$  и  $\varphi$ , получим

$$\rho_c = \frac{e^\zeta(\zeta^2 - \zeta) + e^{-\zeta}(\zeta^2 + \zeta)}{e^\zeta(\zeta^2 - \zeta + 1) - e^{-\zeta}(\zeta^2 + \zeta + 1)}, \quad (\text{П3})$$

$$\rho_L = \frac{e^\zeta(\zeta^2 - 3\zeta + 3) - e^{-\zeta}(\zeta^2 + 3\zeta + 3)}{e^\zeta(\zeta^2 + \zeta - 1) - e^{-\zeta}(\zeta^2 - \zeta - 1)}, \quad (\text{П4})$$

где  $\zeta = MH/kT$ . При  $\zeta \ll 1$   $\rho_c = \zeta/2$ ,  $\rho_L = \zeta^2/20$ . Таким образом, для параметра  $\vartheta$  получается  $\vartheta = M/2kT$ . Связь поляризации ФЛ и поляронного вклада в восприимчивость будет выглядеть следующим образом:

$$\vartheta = \frac{3\chi_p}{2NM}, \quad (\text{П5})$$

где  $N$  — концентрация поляронов.

Напомним, что такое рассмотрение требует соблюдения следующих условий:  $E_p \gg MH, kT$ , где  $E_p$  — энергия магнитного полярона. Здесь также уместно отметить, что формулы (П3) и (П4) справедливы для изотропного кристалла. Так, в [7] для случая  $A^0$ -ВМР в одноосном кристалле  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  использовалась зависимость вида  $\rho_c \sim \text{th } \zeta$ , поскольку вырождение валентной зоны снято и проекция углового момента дырки на ось кристалла, даже в отсутствие внешнего магнитного поля, может принимать только два значения.

Для случая хаотически ориентированных локальных полей с характерной величиной  $H_c$  (распределение полей по величине мы здесь учитывать не будем) следует выразить угол между суммарным полем  $H_s$  и осью  $Z$  через угол между  $H_c$  и  $Z$ , а затем усреднить (П1) и (П2) по ориентациям локального поля

$$\rho_c = \frac{(1 + \nu) \left( \frac{4}{3} + \frac{2}{3\nu} - \frac{2}{3\nu^2} \right) - |1 - \nu| \left( \frac{4}{3} - \frac{2}{3\nu} - \frac{2}{3\nu^2} \right)}{\frac{7}{2} - \frac{1}{2\nu^2} + \left( \frac{\nu}{4} - \frac{1}{2\nu} + \frac{1}{4\nu^3} \right) \ln \frac{(1+\nu)}{|1-\nu|}}, \quad (\text{П6})$$

$$\rho_L = \frac{\frac{5}{2} - \frac{3}{2\nu^2} + \left( \frac{3\nu}{4} - \frac{3}{2\nu} + \frac{3}{4\nu^3} \right) \ln \frac{(1+\nu)}{|1-\nu|}}{\frac{9}{2} + \frac{1}{2\nu^2} - \left( \frac{\nu}{4} - \frac{1}{2\nu} + \frac{1}{4\nu^3} \right) \ln \frac{(1+\nu)}{|1-\nu|}}. \quad (\text{П7})$$

В пределе малых внешних полей  $\nu = H/H_c \ll 1$ :  $\rho_c = \nu$  ( $\vartheta = 1/H_c$ ),  $\rho_L = 3\nu^2/20$ . Область применимости этой модели кроме неравенств  $E_p \gg \gg MH_s \gg kT$  ограничивается требованием неразрушения локальных полей внешним полем, связанным со свойствами спинового стекла.

### Список литературы

- [1] Diluted Magnetic Semiconductors / Ed. J. Furdyna, J.Kossut // Semiconductors and Semimetals / Ed. R.K.Willardson, A.C.Beer. N.Y.: Acad. Press, 1988. V. 25. 470 p.
- [2] Oseroff S.B. // Phys. Rev. B. 1982. V. 25. N 11. P. 6484-6494.
- [3] Kierzek-Pecold E., Szymanska W., Galazka R.R. // Solid State Commun. 1984. V. 50. P. 685.
- [4] Warnock J., Kershaw R.N., Ridgely D., Dwight K., Wold A., Galazka R.R. // J. Lumin. 1985. V. 34. P. 25-35.
- [5] Kusrayev Yu.G., Zakharchenya B.P. // Proc. 20th Int. Conf. Phys. Semicond., Thessaloniki. Greece, 1990. V. 1. P. 738-741.
- [6] Bugayski M., Becla P., Wolff P.A., Heiman D., Ram-Mohan L.R. // Phys. Rev. B. 1988. V. 38. N 15. P. 10512-10516.
- [7] Heiman D., Becla P., Kershaw R.N., Ridgely D., Dwight K., Wold A., Galazka R.R. // Phys. Rev. B. 1986. V. 34. N 16. P. 3961-3969.
- [8] Jaspersen S.N., Shnatterly S.E. // Rev. Sci. Inst. 1969. V. 40. P. 761-767.
- [9] Mockh G., Ossaw W., Yakovlew D.R., Waag A., Hommel D., Landwehr G. // Proc. 21th Int. Conf. Phys. Semicond., Beijing. China, 1992.
- [10] Ram-Mohan L.R., Wolff P.A. // Phys. Rev. B. 1988. V. 38. N 2. P. 1330-1339.
- [11] Кусраев Ю.Г., Кудинов А.В. // ФТТ. 1994. Т. 36. № 7. С. 2088-2098.