

ДЕТЕКТИРОВАНИЕ ЯМР ^{127}I В КРИСТАЛЛЕ HgI_2 МЕТОДОМ ОПТИЧЕСКОЙ ОРИЕНТАЦИИ

© Р.И.Джиоев, Ю.Г.Курсаев

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия
(Поступила в Редакцию 7 февраля 1996 г.)

Экспериментально исследована поляризация электронов и ядер решетки кристалла HgI_2 в условиях оптической ориентации. Оптически зарегистрирован магнитный резонанс на ядрах иода (^{127}I), испытывающих действие неаксиально-го градиента внутрискристаллического электрического поля. Угловые зависимости частот магнитного резонанса хорошо описываются в модели анизотропного g -фактора ядра. Определен параметр неаксиальности градиента электрического поля $\eta = 0.49 \pm 0.05$

1. Межзонное поглощение циркулярно поляризованного света в полупроводниках сопровождается ориентацией электронных спинов. Сверхтонкое взаимодействие электронных и ядерных спинов приводит к поляризации ядер решетки кристалла [1]. Прецессия электронного спина в эффективном магнитном поле поляризованных ядер вызывает изменение среднего спина электронов. Таким образом, в полупроводнике создается связанная электронно-ядерная спиновая система. Измерение степени поляризации рекомбинационного излучения, которая определяется величиной среднего спина электронов, позволяет оптически детектировать спиновую поляризацию как электронов, так и ядер. Наличие эффективного поля поляризованных ядер проявляется в виде особенностей на кривой магнитной деполяризации люминесценции [2]. В работах [3,4] оптически зарегистрирован ядерный магнитный резонанс на всех изотопах ядер решетки в соединениях GaAs и GaAlAs. В твердых растворах GaAlAs частичное замещение галлия алюминием нарушает симметрию тетраэдрического окружения мышьяка и приводит к квадрупольному взаимодействию ядер с возникающим градиентом электрического поля (ГЭП) [1]. В этих условиях ядерная поляризация зависит от ориентации магнитного поля относительно кристаллографических осей. Именно с этим связаны анизотропия формы кривой магнитной деполяризации и угловые зависимости частот ЯМР.

2. В настоящей работе приводятся результаты экспериментального исследования методом оптически детектируемого магнитного резонанса (ОДМР) поляризации электронов и ядер решетки в кристаллах иодида ртути тетрагональной модификации (симметрия D_{4h}). В этом кристалле контактное взаимодействие электронов с ядрами эффективно, поскольку зона проводимости s -типа. Кроме того, соединение HgI_2

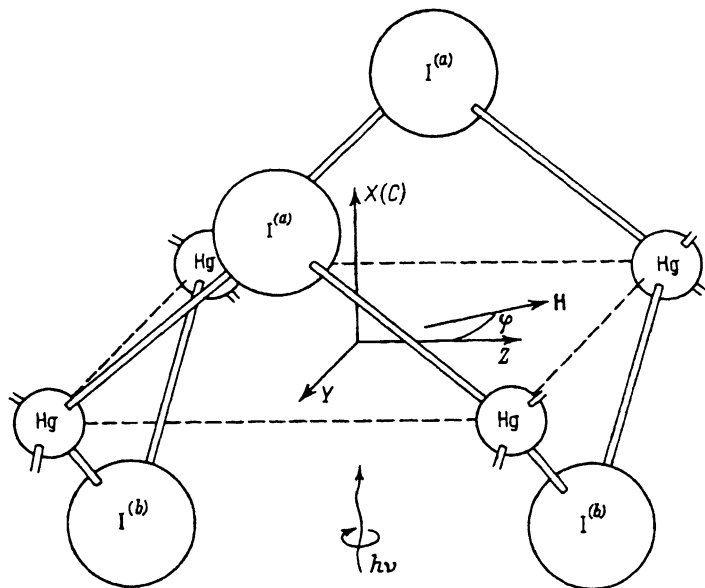


Рис. 1. Фрагмент решетки кристалла HgI₂ и геометрия эксперимента.

образовано из атомов с большим зарядом ядра, что приводит к большой плотности электронного заряда на ядрах. Этим, по-видимому, обусловлено сильное проявление поля поляризованных ядер в опытах по оптическому охлаждению спиновой системы ядра в HgI₂ [5].

В твердых растворах GaAlAs неаксиальность тензора ГЭП может быть обусловлена замещением Ga на Al в третьей и более далеких координационных сферах [6], поэтому соответствующий параметр асимметрии $\eta = (q_{xx} - q_{yy})/q_{zz} \ll 1$, где q_{ii} — диагональные компоненты тензора ГЭП. В кристалле же HgI₂ неаксиальность определяется ближайшим окружением ядер ¹²⁷I в бинарной решетке, и соответствующий параметр асимметрии может быть большим. Эти обстоятельства делают HgI₂ хорошим модельным объектом для исследования ЯМР в условиях сильного квадрупольного расщепления спиновых уровней. Ядра иода-127 (спин $J = 5/2$, естественная распространенность 100%) в кристалле HgI₂ испытывают действие неаксиального градиента внутрикристаллического электрического поля, что приводит к квадрупольному расщеплению спиновых уровней и значительной анизотропии зеемановских расщеплений. Характер расщепления энергетических уровней ядер зависит от симметрии тензора ГЭП. При отсутствии аксиальной симметрии ГЭП уровни энергии ядер не могут быть охарактеризованы проекцией момента, и соответствующие волновые функции представляют собой суперпозицию чистых спиновых состояний. Зеемановское расщепление этих состояний сильно зависит от угла между магнитным полем и осью тензора ГЭП. Для расчета зеемановских расщеплений каждой пары квадрупольно-расщепленных подуровней удобно вводить псевдоспин $j = 1/2$ и анизотропный g -фактор [7]. В [6] проведен расчет соответствующих компонент тензора g при условии, что квадрупольное расщепление много больше зеемановского. Далее бу-

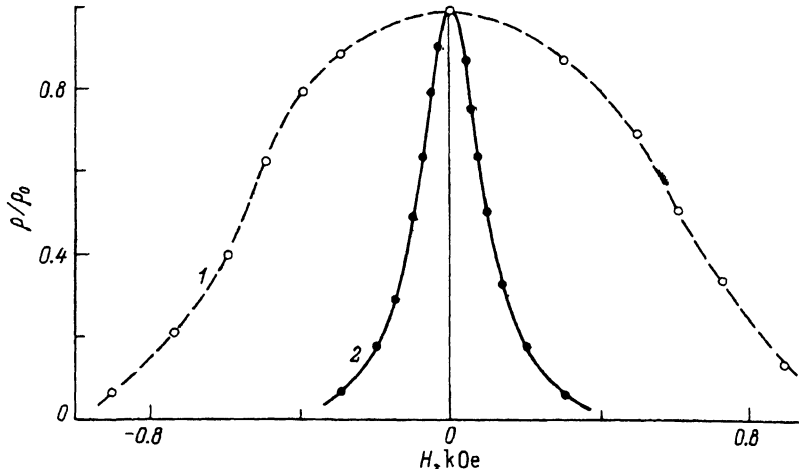


Рис. 2. Зависимости степени циркулярной поляризации излучения экситона, связанного на нейтральном акцепторе, от поперечного магнитного поля. 1 — знак поляризации возбуждающего света фиксирован, 2 — возбуждение при модуляции знака циркулярной поляризации света на частоте 30 kHz.

дет показано, что экспериментально измеренные частоты ОДМР ^{127}I хорошо согласуются с расчетными в модели псевдоспина и анизотропного g -фактора.

3. Эксперименты проводились при температуре 4.2 К на монокристаллах HgI_2 , выращенных из газовой фазы. Образцы специально не легировались. Поверхность представляла собой свежий скол в плоскости, перпендикулярной оптической оси C кристалла. Люминесценция возбуждалась циркулярно поляризованным светом криптонового ($\lambda = 520.8 \text{ nm}$) или аргонового ($\lambda = 514.5 \text{ nm}$) лазеров вдоль оси C (рис. 1). Измерялись степень циркулярной поляризации рекомбинационного излучения ρ и ее зависимость от магнитного поля на линии ($\lambda = 531.7 \text{ nm}$). Эта линия обусловлена рекомбинацией экситона, связанного на нейтральном акцепторе. Суммарный спин дырок в таком экситонно-примесном комплексе равен нулю, так что наблюдаемая на эксперименте величина ρ обусловлена поляризацией электронов в комплексе A^0X [8]. Поляризация излучения измерялась при возбуждении светом с фиксированным знаком круговой поляризации и при модуляции знака поляризации на частоте 30 kHz. Магнитное поле прикладывалось в направлении, перпендикулярном оси C кристалла. При изучении магнитного резонанса к образцу кроме постоянного магнитного поля прикладывалось радиочастотное поле в направлении, поперечном постоянному.

На рис. 2 приведены зависимости степени циркулярной поляризации люминесценции экситона, связанного на нейтральном акцепторе, от магнитного поля H в случае возбуждения светом с фиксированным знаком круговой поляризации (кривая 1) и при модуляции знака поляризации возбуждающего света (кривая 2). Как видно из этого рисунка, при фиксированном знаке поляризации возбуждающего света полуширина кривой деполяризации сильно возрастает. Этот эффект обусловлен влиянием поляризации ядер на средний спин электронов. В

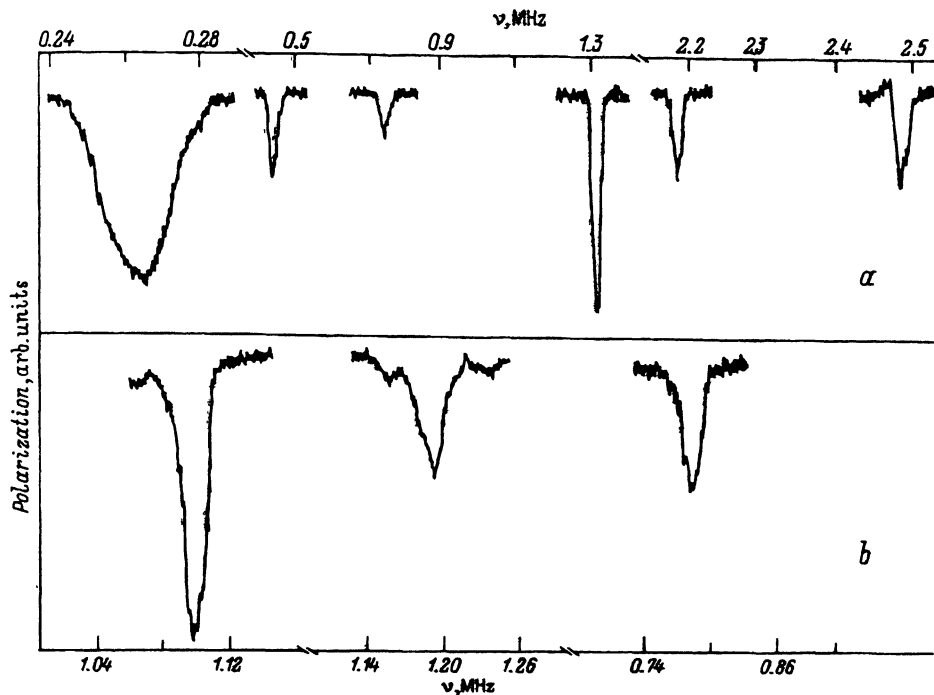


Рис. 3. Оптически детектируемые линии ЯМР в кристалле HgI_2 для двух ориентаций магнитного поля.
 а — $\varphi = 6^\circ$, $H = 600$ Ое, б — $\varphi = 44^\circ$, $H = 400$ Ое.

случае модуляции знака круговой поляризации возбуждающего света поляризации ядер не возникает из-за больших времен спиновой релаксации (ядерный спин не успевает следить за быстрыми изменениями электронного спина) [1]. При фиксированном же знаке круговой поляризации возбуждающего света сверхтонкое взаимодействие поляризованных электронов с ядрами решетки приводит к поляризации ядер. Поляризованные ядра в свою очередь создают на электронах сверхтонкое поле \mathbf{H}_n , которое может сильно повлиять на спиновую ориентацию электронов, поскольку прецессия электронного спина происходит в суммарном поле $\mathbf{H} + \mathbf{H}_n$. В рассматриваемом случае эффективное магнитное поле ядер \mathbf{H}_n , по-видимому, имеет значительную проекцию вдоль электронного спина, что и приводит к замедлению темпа деполаризации во внешнем магнитном поле \mathbf{H} . Дополнительным аргументом в пользу предложенной интерпретации является результат измерения $\rho(H)$ в наклонном магнитном поле. Оказалось, что отклонение внешнего магнитного поля на несколько градусов от направления, перпендикулярного лучу возбуждающего света, приводит к резкой асимметрии кривых Ханле. Отметим, что при таких же наклонах поля кривые Ханле при модуляции знака циркулярной поляризации возбуждающего света остаются симметричными.

Непосредственное подтверждение наличия ядерного поля было получено при приложении к образцу радиочастотного поля, вызывающего резонансные переходы между ядерными зеемановскими подуровнями. Как видно из рис. 2, исключение или уменьшение поля ядер H_n

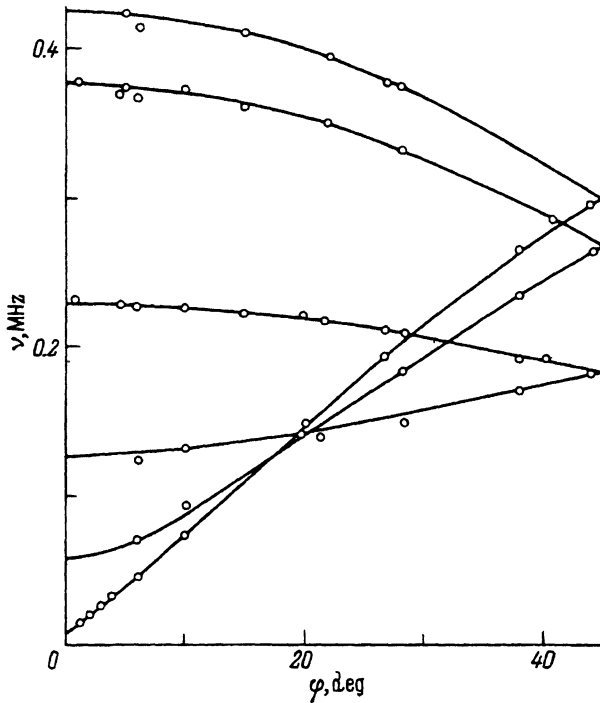


Рис. 4. Зависимости частот ЯМР от угла между магнитным полем и осью Z . Точки — экспериментальные значения, сплошные линии — расчет по формуле (1).

должно привести к уменьшению поляризации излучения (переход от кривой 1 к кривой 2). На рис. 3 приведены зависимости степени циркулярной поляризации излучения экситона от частоты ν переменного магнитного поля $H_1 \perp H$ для двух различных ориентаций внешнего поля ($\varphi = 6$ и 44°). Видно, что изменение ориентации магнитного поля H относительно кристаллографических осей в плоскости YZ приводит к изменению как положений, так и интенсивностей резонансных линий. На рис. 4 приведены зависимости частот наблюдаемых резонансов от угла φ между магнитным полем ($H = 100$ Ое) и осью C кристалла (рис. 1).

4. Проанализируем приведенные на рис. 4 экспериментальные результаты на основе модели анизотропного g -фактора ядер [6]. В этой модели каждую пару квадрупольно расщепленных подуровней ядер ^{127}I можно рассматривать как соответствующую квазичастице со спином $j = 1/2$ и анизотропным g -фактором. На псевдоспин таких частиц действует эффективное магнитное поле $H_i = g^{(i)} H$, где $g^{(i)}$ — g -фактор i -й пары уровней $i = 1, 2, 3$ (в случае аксиально-симметричного ГЭП этим парам подуровней соответствуют состояния с проекцией момента на ось симметрии ГЭП $m = \pm 1/2, \pm 3/2, \pm 5/2$). Зеемановское расщепление спиновых уровней $\Delta E^{(i)} = \gamma \hbar |g^{(i)} H| = \gamma \hbar H_i$, где γ — гиромагнитное отношение, \hbar — постоянная Планка. Это расщепление численно равно разности энергий уровней ядра со спином $j = 1/2$ в эффективном поле H_i . Сопоставление экспериментальных и расчетных угловых за-

висимостей частот ЯМР позволяет идентифицировать наблюдаемые резонансы. Действительно, только для $\eta = 0.49 \pm 0.05$ нам удалось найти такие значения g_{zz} и g_{yy} , которые позволяют описать угловые зависимости частот всех резонансов, наблюдаемых на эксперименте,

$$\nu(\varphi) = \frac{\gamma H_0 g_{yy}}{2\pi} \sqrt{[(g_{zz}/g_{yy})^2 - 1] \cos^2 \varphi + 1}. \quad (1)$$

Здесь $\gamma/2\pi = 856.5 \text{ Hz/G}$ [9], зависимости $g_{ii}(\eta)$ рассчитаны в [5]. На рис. 4 сплошными линиями представлены рассчитанные по формуле (1) зависимости $\nu(\varphi)$ для всех квадрупольно расщепленных подуровней 1, 2, 3 в магнитном поле $H_0 = 100 \text{ Oe}$. Значение параметра асимметрии η , найденное из сопоставления экспериментальных зависимостей $\nu(\varphi)$ с рассчитанными, находится в хорошем согласии со значением, определенным из экспериментов по квадрупольному резонансу [10] и по резонансному охлаждению [5]. Поскольку в решетке HgI_2 имеются два эквивалентных положения ядер иода $I^{(a)}$ и $I^{(b)}$ (рис. 1), каждый из которых дает три двукратно вырожденных уровня, то в общем случае для данного значения угла φ должно наблюдаться шесть резонансных линий. Как и ожидается из симметрии кристалла, резонансы ядер иода $I^{(a)}$ и $I^{(b)}$ при $\varphi = 45^\circ$ попарно совпадают, и наблюдаются только три резонансных линии. Кроме того, при некоторых значениях угла φ , как видно из рис. 4, имеет место случайное вырождение. Следует отметить, что даже вдали от углов, при которых имеется вырождение, не всегда наблюдаются все шесть резонансов, так как их интенсивность сильно зависит от угла φ . Эта зависимость определяется двумя факторами: во-первых, поляризация ядер зависит от угла φ (через анизотропный g -фактор) [6]; во-вторых, резонансные переходы между зеемановскими подуровнями индуцируются эффективным переменным магнитным полем с амплитудой $H_1^{\text{ef}} = gH_1$ (тоже зависящим от угла) (H_1 — амплитуда внешнего радиочастотного поля). Таким образом, все наблюдаемые линии в спектре оптически детектируемого ЯМР обусловлены переходами между спиновыми подуровнями ядер иода. Отсутствие резонансов на ядрах ртути, видимо, связано с тем, что естественная распространенность изотопов ртути, имеющих ненулевой спин, мала: ^{199}Hg — 16.85% и ^{201}Hg — 13.2%. Кроме того, атомов ртути в решетке HgI_2 в 2 раза меньше. И наконец, возможно, утечка ядерного спина затрудняет наблюдение ЯМР.

В заключение отметим, что описанный эксперимент свидетельствует о сильной поляризации ядер, попадающих в область локализации экситона. Как известно, поляризация ядер в полупроводниках наиболее эффективно осуществляется при локализации электронов, например при захвате на донорный центр [11]. Такая же ситуация имеет место в случае экситона, локализованного на нейтральном акцепторе, поскольку спиновое состояние такого комплекса определяется нескомпенсированным спином электрона. Это дает возможность оптически создавать и регистрировать поляризацию ядер в полупроводниках, в которых концентрация доноров незначительна.

Таким образом, осуществлено оптическое детектирование ЯМР в условиях сильного квадрупольного расщепления ядерных уровней.

Проведена идентификация наблюдаемых резонансных линий ядер в кристаллах иодида ртути. Показано, что угловые зависимости линий ОДМР хорошо описываются в модели анизотропного g -фактора ядер.

Работа была выполнена при финансовой поддержке Министерства науки (программа «Физика твердотельных наноструктур», проект № 1-002).

Список литературы

- [1] Оптическая ориентация. Современные проблемы науки о конденсированных средах / Под ред. Б.П.Захарченко и Ф.Майера. Л. (1989). 408 с.
- [2] Dyakonov M.I., Perel V.I., Berkovits V.L., Ekimov A.I., Safarov V.I. Proc. of the 12th Int. Conf. Phys. Semicond. Stuttgart (1974). P. 771-775.
- [3] Берковиц В.Л., Екимов А.И., Сафаров В.И. ЖЭТФ **65**, 1, 346 (1973).
- [4] Paget D. Phys. Rev. **B24**, 3776 (1981).
- [5] Кусраев Ю.Г., Артемова Е.С., Джюев Р.И., Захарченя Б.П., Меркулов И.А., Флейшер В.Г. ФТТ **24**, 9, 2705 (1982).
- [6] Артемова Е.С., Меркулов И.А. ФТТ **24**, 2, 433 (1982).
- [7] Абрагам А., Блини Б. Электронный спиновый резонанс переходных ионов. М. (1972). Т. I. 651 с.
- [8] Джюев Р.И., Захарченя Б.П., Кусраев Ю.Г., Флейшер В.Г. Изв. АН СССР. Сер. физ. **46**, 3, 514 (1982).
- [9] Леше А. Ядерная индукция / Пер. с нем.; Под ред. П.М.Бородина. М. (1963). 684 с.
- [10] Kojima S., Tsukada K., Ogawa S., Shimauchi A. J. Chem. Phys. **23**, 1963 (1955).
- [11] Дьяконов М.И., Перель В.И. ЖЭТФ **65**, 362 (1973).