

03,09

## Спин-зависимая рекомбинация в твердых растворах $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ в наклонном магнитном поле

© Е.Л. Ивченко, Л.А. Бакалейников, М.М. Афанасьев, В.К. Калевич

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: ivchenko@coherent.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 11 февраля 2016 г.)

Экспериментально и теоретически изучены оптическая ориентация и спин-зависимая рекомбинация Шокли–Рида–Холла в полупроводнике в магнитном поле при произвольном угле  $\alpha$  между полем и циркулярно-поляризованным возбуждающим лучом. Эксперименты выполнены при комнатной температуре в твердых растворах  $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ , в которых ответственными за спин-зависимую рекомбинацию являются глубокие парамагнитные центры. Наблюдаемые магнитополевые зависимости круговой поляризации  $\rho(\mathbf{B})$  и интенсивности  $J(\mathbf{B})$  фотолюминесценции можно приближенно представить в виде суперпозиции двух лоренцевских контуров, нормального и инвертированного, полуширины которых различаются на порядок величины. Нормальный, узкий, лоренцевский контур связан с деполяризацией поперечной к полю составляющей спиновой поляризации локализованных электронов, а инвертированный, широкий, лоренциан обусловлен подавлением сверхтонкого взаимодействия локализованного электрона с собственным ядром дефекта. Соотношение между высотой одного лоренциана и глубиной другого определяется углом наклона поля  $\alpha$ . В отличие от сверхтонкого взаимодействия электрона, связанного на мелком доноре, с большим числом ядер основной решетки в спиновой поляризации изучаемой электронно-ядерной системы в наклонном поле не возникает дополнительного узкого пика. Этот результат демонстрирует, что в твердом растворе  $\text{GaAsN}$  сверхтонкое взаимодействие локализованного электрона с одним ядром парамагнитного центра остается сильным даже при комнатной температуре. Для теоретического описания эксперимента мы обобщили теорию спин-зависимой рекомбинации через глубокие парамагнитные центры с моментом ядра  $I = 1/2$ , развитую ранее для частного случая продольного поля. Рассчитанные кривые  $\rho(\mathbf{B})$ ,  $J(\mathbf{B})$  согласуются с приближенным описанием экспериментальных зависимостей в виде суммы двух лоренцианов, дополнительного узкого сдвинутого пика в расчете также не появляется.

Работа выполнена при частичной поддержке правительства Российской Федерации (проект 14.Z50.31.0021) и грантов РФФИ 14-02-00959 и 15-52-12012.

### 1. Введение

Спин-зависимая рекомбинация Шокли–Рида–Холла привлекает в последние годы значительное внимание, поскольку позволяет получать аномально высокие значения спиновой поляризации электронов проводимости в немагнитных полупроводниках при комнатной температуре [1–7] (см. также обзор [8]). В основе этого эффекта лежит спин-зависимый захват оптически ориентированных электронов проводимости на глубокие парамагнитные центры, в результате которого электроны, локализованные на центрах, динамически поляризуются по спину и, действуя как спиновый фильтр, блокируют дальнейшую рекомбинацию электронов с преимущественной ориентацией спинов из зоны проводимости. Эффективность спинового фильтра увеличивается с ростом накачки, что при больших накачках позволяет получать электронную поляризацию, близкую к 100%.

Нелинейная связь спиновых подсистем свободных и локализованных электронов приводит к ряду ярких эффектов в магнитном поле. Так, спиновая деполяризация электронов в магнитном поле, перпендикулярном возбуждающему лучу (эффект Ханле, геометрия Фойгта), описывается суперпозицией двух лоренцевских конту-

ров, ширины которых на полувысоте различаются на два–три порядка: большое время спиновой релаксации локализованных электронов ( $\sim 1$  ns) определяет ширину узкого контура ( $\sim 100$  G), тогда как короткое время жизни свободных электронов ( $\sim 1$  ps) задает ширину  $\sim 25$  kG широкого контура [8,9].

Также недавно было выяснено [10–14], что магнитное поле, направленное вдоль возбуждающего луча (геометрия Фарадея), может приводить к увеличению эффективности спинового фильтра и, как следствие, к существенному (до двух раз) возрастанию электронной поляризации и интенсивности краевой фотолюминесценции (ФЛ) при слабых и умеренных скоростях накачки. В основе этого эффекта лежит подавление в продольном магнитном поле спиновой деполяризации электронов, вызванной сверхтонким взаимодействием локализованного электрона с ядром парамагнитного центра, локализуемого этот электрон. При этом эксперимент показал, что магнитополевые зависимости круговой поляризации и интенсивности ФЛ сдвинуты относительно нуля поля на величину  $\sim 100$  G [10–12]. Этот сдвиг изменял знак при смене знака круговой поляризации накачки и был объяснен действием на локализованный электрон поля Оверхаузера  $B_N$ , создаваемого динамически поляризо-

ваным ядром парамагнитного центра [11–13]. При анализе экспериментальных данных, полученных при комнатной температуре, в работах [11–14] предполагался режим сильного сверхтонкого взаимодействия электронного спина с ядерным спином парамагнитного центра, на котором локализован электрон. По определению в этом режиме сверхтонкое расщепление между уровнями с угловым моментом  $I + 1/2$  и  $I - 1/2$  ( $I$  — момент ядра) превышает их ширины, определяемые обратными временами спиновой релаксации электрона и ядра. Доказательство режима сильной связи основывалось на наблюдении многолинейчатого спектра оптически детектированного электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) на междоузельных дефектах смещения  $Ga^{2+}$ , ответственных за спин-зависимую рекомбинацию в  $GaAsN$  [3,4,12]. Однако эти ЭПР-измерения были выполнены при гелиевой температуре, и результаты их анализа переносились на комнатную температуру.

Вместе с тем известно [15,16], что в случае сверхтонкой связи локализованного электрона с большим количеством  $\sim 10^5$  ядер решетки кристалла (слабая связь электрона с каждым отдельным ядром), ядерное поле может достигать величины  $B_N^{max} \sim 5$  Т и, складываясь с внешним магнитным полем, приводит к радикальному изменению электронной поляризации. Наиболее ярко действие ядерного поля проявляется во внешнем магнитном поле, наклоненном под некоторым углом  $\alpha$  к направлению оптической накачки. В этом случае величина ядерного поля  $B_N(\alpha) \propto B_N^{max} \cos \alpha$ . Поэтому при отклонении направления внешнего магнитного поля от плоскости поверхности образца всего на несколько градусов поле Оверхаузера может достигать нескольких килогаусс и сдвигать кривую Ханле на такую же величину относительно нуля поля [15,17,18]. Таким образом, асимметрия кривой Ханле в наклонном магнитном поле может быть использована для качественной оценки типа сверхтонкого взаимодействия (сильного или слабого) на парамагнитном центрах в  $GaAsN$  при комнатной температуре.

В настоящей работе мы провели при комнатной температуре измерение круговой поляризации и интенсивности ФЛ в  $GaAsN$  в магнитном поле, направленном под различными углами к возбуждающему лучу циркулярно поляризованного света. Оптическое возбуждение осуществлялось лазерным излучением, нормально падающим на поверхность образца; вторичное свечение регистрировалась в геометрии „рассеяния назад“. Оказалось, что узкий контур кривой Ханле, связанный с деполяризацией локализованных электронов перпендикулярной составляющей внешнего поля, не смещен относительно нуля магнитного поля даже при больших (до  $45^\circ$ ) углах отклонения магнитного поля от плоскости, нормальной к направлению возбуждения. Это наблюдение позволяет сделать вывод, что сверхтонкое взаимодействие в парамагнитном центре в  $GaAsN$  остается сильным, т.е. локализованный электрон эффективно взаимодействует с единственным ядром центра и

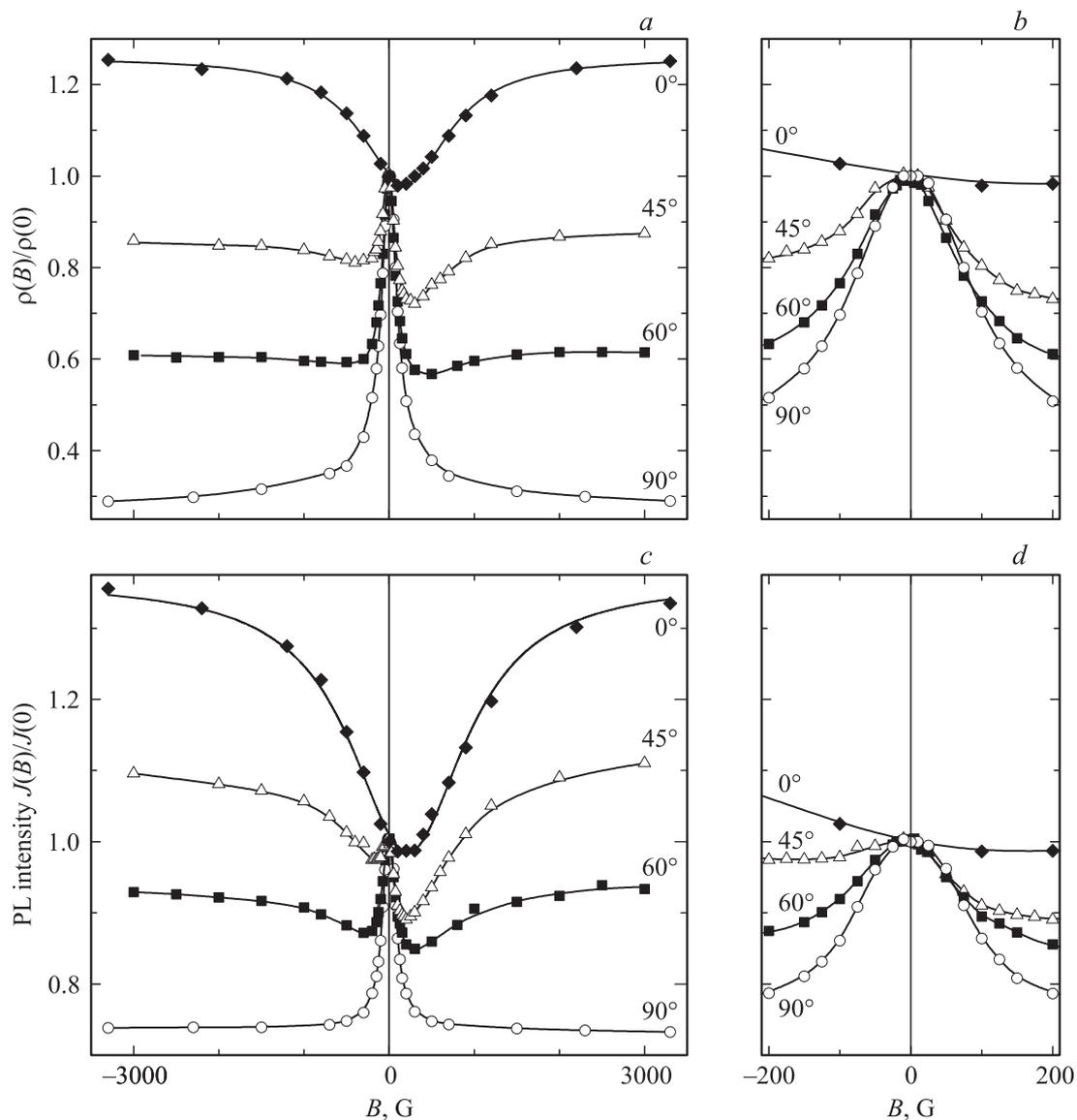
при комнатной температуре. Этот результат является прямым экспериментальным доказательством сильной сверхтонкой связи в разбавленных растворах  $GaAsN$  при комнатной температуре, в тех же условиях, при которых в этих кристаллах зарегистрирована аномально большая спиновая электронная поляризация.

Для теоретического описания результатов эксперимента нами использовалась модель оптической ориентации в полупроводнике, учитывающая (а) спин-зависимую рекомбинацию через глубокие парамагнитные дефекты и (б) сверхтонкое взаимодействие на дефектах, развитая ранее для продольного магнитного поля и спина  $I = 1/2$  [14]. Мы обобщили эту модель на произвольный угол между магнитным полем и направлением возбуждающего луча, при этом количество уравнений увеличивается с 11 до 25 по сравнению с моделью для продольного поля. Усложнение описания обусловлено тем, что в случае наклонного поля все компоненты спиновой матрицы плотности для дефектов с одним и двумя электронами оказываются отличными от нуля. Проведен расчет основных зависимостей. Максимумы расчетных магнитополевых зависимостей круговой поляризации и интенсивности ФЛ не сдвинуты относительно нуля поля, в полном согласии с экспериментальными кривыми.

Статья построена следующим образом. В разделе 2 описываются условия эксперимента и полученные результаты, раздел 3 посвящен описанию теории для спина ядра  $I = 1/2$  и наклонного магнитного поля, в разделе 4 обсуждаются результаты расчета и проводится их сравнение с экспериментом.

## 2. Экспериментальные условия и результаты

Нами исследовалась электронная спиновая поляризация в нелегированном твердом растворе  $GaAs_{0.98}N_{0.02}$ , выращенном методом молекулярно-пучковой эпитаксии (с плазменным источником азота) в виде слоя толщиной  $0.1 \mu m$  на полуизолирующей подложке из  $GaAs(001)$  [19]. Спиновая поляризация свободных электронов  $P$  генерировалась при межзонном поглощении циркулярно-поляризованного света [15]. Непрерывный титан-сапфировый лазер был использован для возбуждения ФЛ. Возбуждающий лазерный луч был направлен по нормали к поверхности образца (в дальнейшем ось  $z$ ), ФЛ регистрировалась в обратном направлении с помощью фотоумножителя с  $InGaAsP$  фотокатодом. Измерялась степень  $\rho$  стационарной круговой поляризации краевой ФЛ, которая пропорциональна степени поляризации свободных электронов [15]:  $\rho = P'P$ , где коэффициент деполяризации  $P' \leq 1$ . Степень поляризации ФЛ определена как отношение  $\rho = (J^+ - J^-)/(J^+ + J^-)$ , где  $J^+$  и  $J^-$  — интенсивности компонент ФЛ, поляризованных по правому ( $\sigma^+$ ) и левому ( $\sigma^-$ ) кругу соответственно,  $J = J^+ + J^-$  — полная интенсивность ФЛ.



**Рис. 1.** Магнитополевые зависимости степени круговой поляризации (*a*, *b*) и интенсивности (*c*, *d*) фотолюминесценции твердого раствора  $\text{GaAs}_{0.98}\text{N}_{0.02}$ , измеренные при углах наклона магнитного поля  $\alpha = 0, 45, 60$  и  $90^\circ$ . Мощность накачки  $W = 60$  мВт,  $T = 300$  К. Сплошные кривые проведены для наглядности.

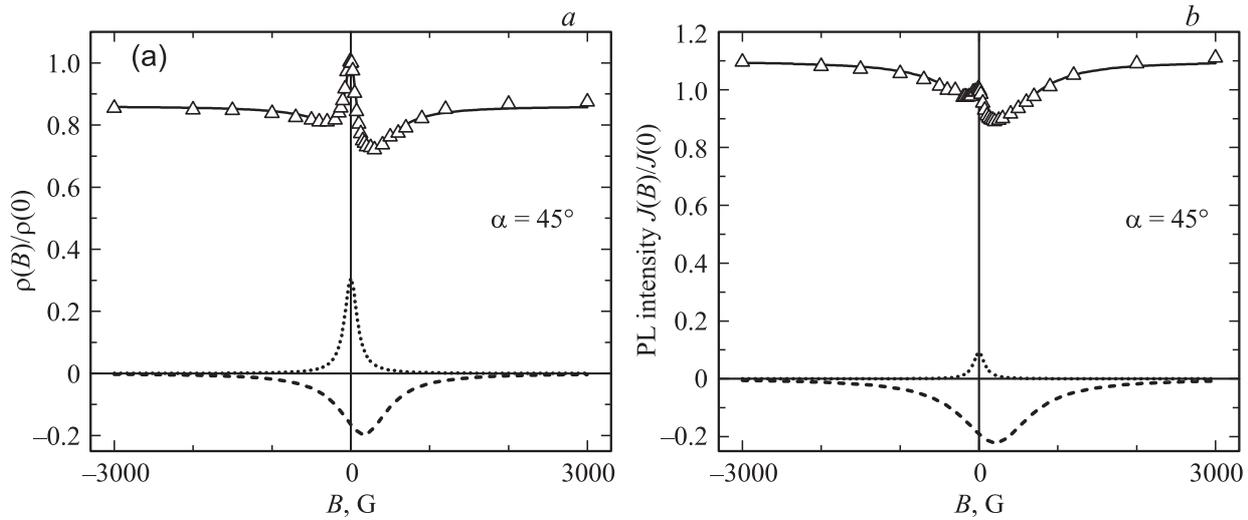
Величины  $J^+$  и  $J^-$  были измерены при комнатной температуре с помощью высокочувствительного анализатора поляризации [20].

На рис. 1 представлены магнитополевые зависимости интенсивности  $J(\mathbf{B})$  и степени круговой поляризации  $\rho(\mathbf{B})$  краевой ФЛ, измеренные в твердом растворе  $\text{GaAs}_{0.98}\text{N}_{0.02}$  при наклоне магнитного поля относительно возбуждающего луча на угол  $\alpha = 0, 45, 60$  и  $90^\circ$ .

В перпендикулярном поле ( $\alpha = 90^\circ$ , кружки) происходит быстрое уменьшение на десятки процентов значений  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$  с полушириной на полувысоте  $B_{1/2}^\perp \sim 100$  Г. Остающаяся подставка в интенсивности не зависит от поля, а поляризация с дальнейшим ростом поля медленно уменьшается. Быстрые изменения  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$  в пределах 100 Г являются следствием магнитной

деполяризации (эффекта Ханле) электронов, локализованных на глубоких парамагнитных центрах [1,8,9]. В сильном поперечном поле локализованные электроны неполяризованы, поэтому скорость рекомбинации свободных фотоэлектронов, а значит и интенсивность междужонной фотолюминесценции, не зависит от поля. Медленное уменьшение круговой поляризации ФЛ обусловлено проявлением эффекта Ханле на свободных электронах, характеризующихся малым спиновым временем жизни. При  $\mathbf{B} \perp z$  во всем диапазоне полей зависимости  $\rho(\mathbf{B})$ ,  $J(\mathbf{B})$  симметричны по отношению к инверсии магнитного поля.

В продольном поле ( $\alpha = 0$ , ромбы) поляризация и интенсивность ФЛ возрастают в результате подавления спиновой релаксации локализованных электронов, воз-



**Рис. 2.** Представление экспериментальных зависимостей  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$  (треугольники), измеренных при угле наклона  $\alpha = 45^\circ$  и мощности накачки 60 mW, в виде суперпозиции нормального (точки) и инвертированного (штриховая линия) лоренцианов.

растание с хорошей точностью описывается инвертированными лоренцианами с полушириной на полуглубине  $B_{1/2}^{\parallel} \sim 1$  kG [10–14]. Кривые  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$  несимметричны: их минимумы сдвинуты относительно точки  $B = 0$ , причем величина сдвига меняет знак при смене круговой поляризации возбуждения с  $\sigma^+$  на  $\sigma^-$ . Как показано в [10–13], этот сдвиг вызван полем Оверхаузера  $B_N$ . Он увеличивается с накачкой (до  $B_N^{\max} \approx 250$  G [11]) и для мощности возбуждения  $W = 60$  mW, соответствующей рис. 1, составляет  $\approx 200$  G.

В наклонном поле для  $\alpha = 45^\circ$  и  $60^\circ$  (соответственно треугольники и квадраты) кривые  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$  можно приближенно представить в виде постоянной составляющей и суперпозиции двух лоренцевских контуров, нормального и инвертированного, с резко различающимися ширинами, соответственно  $\sim 100$  и  $\sim 1000$  G. На рис. 2 указанные два контура представлены точечными и штриховыми линиями. Узкий контур является симметричным относительно нуля поля, тогда как широкий контур смещен относительно значения  $B = 0$  в ту же сторону, что и в чисто продольной геометрии. На рис. 1, *a, c* видно, что с увеличением угла наклона вклад узкого контура увеличивается, а широкого уменьшается. Большая разница ширин узкого и широкого контуров, а также изменение их относительных вкладов с изменением угла  $\alpha$  указывают на то, что форма кривых  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$  в наклонном поле определяется конкуренцией деполаризации локализованных электронов поперечной составляющей внешнего поля  $\mathbf{B}_\perp$  и замедлением их спиновой релаксации продольной компонентой  $B_z$ . Обращает на себя внимание то, что максимум узкой части кривой  $\rho(\mathbf{B})$  или  $J(\mathbf{B})$  на рис. 1 не сдвигается при уменьшении угла наклона от  $90^\circ$  до  $45^\circ$ , это особенно хорошо видно на панелях (b) и (d) рис. 1, на которых масштаб поля специально растянут.

### 3. Теория для ядра с $I = 1/2$

Основная цель теоретической части настоящей работы — продемонстрировать отсутствие на зависимостях  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$  узкого пика, сдвинутого относительно точки  $B = 0$ . В этом разделе мы обобщим теорию спин-зависимой рекомбинации, развитую в [14] для ядра с угловым моментом  $I = 1/2$  и продольного магнитного поля  $\mathbf{B} \parallel z$ , и рассмотрим случай произвольного угла наклона  $\alpha$  между  $\mathbf{B}$  и осью  $z$ . Модель со спином ядра  $1/2$  относительно проста и, как будет показано, качественно объясняет симметричность центрального максимума и подтверждает режим сильного сверхтонкого взаимодействия локализованного электрона, тем самым исключая режим слабого взаимодействия. Как указывалось в [14], для объяснения сдвига кривых  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$  в продольном поле нужно рассматривать ядра с моментом  $I > 1/2$ , эту задачу планируется решать в другой работе.

Используя уравнения кинетики для спиновых матриц плотности для глубокого центра с одним электроном и двумя электронами, мы вывели для произвольного направления поля  $\mathbf{B}$  систему уравнений, связывающих между собой 25 величин  $n, p, N_2, N_1, S_\lambda, S_{c,\lambda}, S_{n1,\lambda}, S_{n2,\lambda}, \Phi_{\lambda\eta}$  ( $\lambda, \eta = x, y, z$ ). Эти уравнения имеют вид

$$c_p N_{2p} = G, \tag{1a}$$

$$c_n (nN_1 - 4SS_c) = G, \tag{1b}$$

$$c_n (N_1 \mathbf{S} - n \mathbf{S}_c) + \frac{\mathbf{S}}{\tau_s} + \mathbf{S} \times \boldsymbol{\omega} = \frac{P_i}{2} \mathbf{G} \mathbf{e}_z, \tag{1c}$$

$$c_n (nS_{c\lambda} - N_1 S_\lambda) + \frac{S_{c\lambda}}{\tau_{sc}} + (\mathbf{S}_c \times \boldsymbol{\beta})_\lambda + \Omega e_{\lambda\mu\nu} \Phi_{\mu\nu} = 0, \tag{1d}$$

$$c_n(n\Phi_{\lambda\eta} - S_{\lambda}S_{n1,\eta}) + \left(\frac{1}{\tau_{sc}} + \frac{1}{\tau_{n1}}\right)\Phi_{\lambda\eta} + e_{\lambda\mu\nu}\Phi_{\mu\eta}\beta_{\nu} + \frac{\Omega}{4}e_{\lambda\eta\mu}(S_{n1,\mu} - S_{c\mu}) = 0, \quad (1e)$$

$$c_n(nS_{n1,\lambda} - 4S_{\mu}\Phi_{\mu\lambda}) + \frac{S_{n1,\lambda}}{\tau_{n1}} - \Omega e_{\lambda\mu\nu}\Phi_{\mu\nu} = c_p p S_{n2,\lambda}, \quad (1f)$$

$$c_p p S_{n2,\lambda} + \frac{S_{n2,\lambda}}{\tau_{n2}} = c_n(nS_{n1,\lambda} - 4S_{\mu}\Phi_{\mu\lambda}), \quad (1g)$$

$$N_1 + N_2 = N_c, \quad (1h)$$

$$p = n + N_2. \quad (1i)$$

Здесь  $G$  — скорость оптической генерации электронов (и дырок) в зону проводимости (валентную зону),  $\mathbf{o}_z$  — единичный вектор в направлении нормали  $z$ ,  $e_{\lambda\eta\mu}$  — единичный антисимметричный тензор третьего ранга,  $P_i$  — степень спиновой ориентации фотоэлектронов в момент возбуждения,  $n$  и  $p$  — концентрации свободных электронов в зоне проводимости и свободных дырок в валентной зоне,  $\mathbf{S}$  и  $\mathbf{S}_c$  — спиновые поляризации свободных и локализованных электронов,  $N_1, N_2$  и  $S_{n1,\lambda}, S_{n2,\lambda}$  — концентрации глубоких центров и компоненты среднего суммарного спина ядер в состояниях дефекта с одним и двумя связанными электронами соответственно,  $\Phi_{\lambda\eta}$  — компоненты тензора, описывающего корреляцию между спином электрона и спином ядра, на котором локализован этот электрон. В отсутствие корреляции  $\Phi_{\lambda\eta} = S_{c\lambda}S_{n1,\eta}/N_1$ ; при полной ориентации спинов вдоль оси  $z$  компонента  $\Phi_{zz} = N_1/4$ , а все остальные компоненты  $\Phi_{\lambda\eta}$  с  $\lambda \neq z, \eta \neq z$  равны нулю. Уравнения (1) выводятся из уравнений для спиновых матриц плотности  $\rho_{s',m';s,m}$  и  $N_{2,m',m}$  для дефектов с одним и двумя электронами, где  $s, s' = \pm 1/2$  и  $m, m' = \pm 1/2$  — проекции спина электрона и ядра на ось  $z$ . Искомые физические величины в (1) выражаются через компоненты матриц плотности следующим образом

$$N_2 = \sum_m N_{2,m,m}, \quad N_1 = \sum_{sm} \rho_{s,m;s,m},$$

$$S_{c\lambda} = \frac{1}{2} \sum_{ss'm} \sigma_{\lambda,ss'}^e \rho_{s',m';s,m}, \quad S_{n1,\lambda} = \frac{1}{2} \sum_{smm'} \sigma_{\lambda,mm'}^n \rho_{s,m';s,m},$$

$$S_{n2,\lambda} = \frac{1}{2} \sum_{mm'} \sigma_{\lambda,mm'}^n N_{2,m',m},$$

$$\Phi_{\lambda\eta} = \frac{1}{4} \sum_{ss'mm'} \sigma_{\lambda,ss'}^e \rho_{s',m';s,m} \sigma_{\eta,mm'}^n, \quad (2)$$

где  $\sigma_{\lambda,ss'}^e, \sigma_{\lambda,mm'}^n$  — спиновые матрицы Паули для электрона и ядра. В уравнения (1) входит следующий набор параметров системы: плотность глубоких центров (дефектов)  $N_c$ , коэффициент  $c_n$  захвата свободного электрона на глубокий уровень с одним локализованным электроном, коэффициент рекомбинации  $c_p$  свободной дырки с одним из двух электронов, локализованных на

одном дефекте, времена спиновой релаксации свободных электронов ( $\tau_s$ ), связанных электронов ( $\tau_{sc}$ ), ядер дефектов с одним связанным электроном ( $\tau_{n1}$ ) и двумя связанными электронами ( $\tau_{n2}$ ), факторы Ланде  $g$  для электронов в зоне проводимости и  $g_c$  для связанных электронов, определяющие соответствующие частоты ларморовой прецессии  $\omega = g\mu_B \mathbf{B}/\hbar, \beta = g_c\mu_B \mathbf{B}/\hbar, \mu_B$  — магнетон Бора. Частота  $\Omega$  есть отношение  $A/\hbar$ , где  $A$  — константа сверхтонкого взаимодействия электронного и ядерного спинов, описываемого гамильтонианом

$$\mathcal{H}_{\text{hf}} = A \mathbf{s}^e \cdot \mathbf{s}^n = A \left[ s_z^e s_z^n + \frac{1}{2} (s_+^e s_-^n + s_-^e s_+^n) \right],$$

$s_{\pm}^e = s_x^e \pm i s_y^e, s_{\pm}^n = s_x^n \pm i s_y^n, \mathbf{s}^e$  и  $\mathbf{s}^n$  — операторы спина с проекциями  $\hat{\sigma}_{\lambda}^e/2$  и  $\hat{\sigma}_{\lambda}^n/2$ . Как и в предыдущей работе [14], мы пренебрегаем прямым действием магнитного поля на спин ядра.

Заметим, что в продольном магнитном поле число отличных от нуля величин уменьшается до 13-ти, это  $n, p, N_2, N_1, S_z, S_{cz}, S_{n1,z}, S_{n2,z}, \Phi_{zz}, \Phi_{xy} = -\Phi_{yx}$  и  $\Phi_{xx} = \Phi_{yy}$ , среди них 11 линейно независимых. В работе [14] мы выразили  $\Phi_{xy}, \Phi_{yx}, \Phi_{xx}$  и  $\Phi_{yy}$  через остальные 9 величин и привели под номером (29) получившуюся при этом систему из 9 уравнений. В наклонном поле все 25 величин отличны от нуля, система (1) в общем случае требует численного решения и допускает аналитические решения только в частных предельных случаях.

Численное решение системы (1) удобно разделить на три этапа. Прежде всего, исключим из уравнений (1b), (1c) спиновую поляризацию локализованных электронов  $\mathbf{S}_c$ . Для этого умножим уравнение (1b) на  $n$ , а уравнение (1c) скалярно на  $4\mathbf{S}$  и вычтем одно из другого. Разрешая получившееся уравнение относительно концентрации  $N_1$ , найдем ее как функцию концентрации электронов  $n$  и степени поляризации свободных электронов  $\mathbf{P} = 2\mathbf{S}/n$ . Далее мы вводим безразмерные величины

$$Y = \frac{N_2}{N_c} = \frac{N_c - N_1}{N_c}, \quad Z = \frac{n}{N_c}, \quad X = \frac{G}{c_p N_c^2}$$

и параметры  $\tau_h^* = (c_p N_c)^{-1}, a = c_p/c_n$ . С учетом соотношения (1i) уравнение (1a) в новых переменных преобразуется к виду

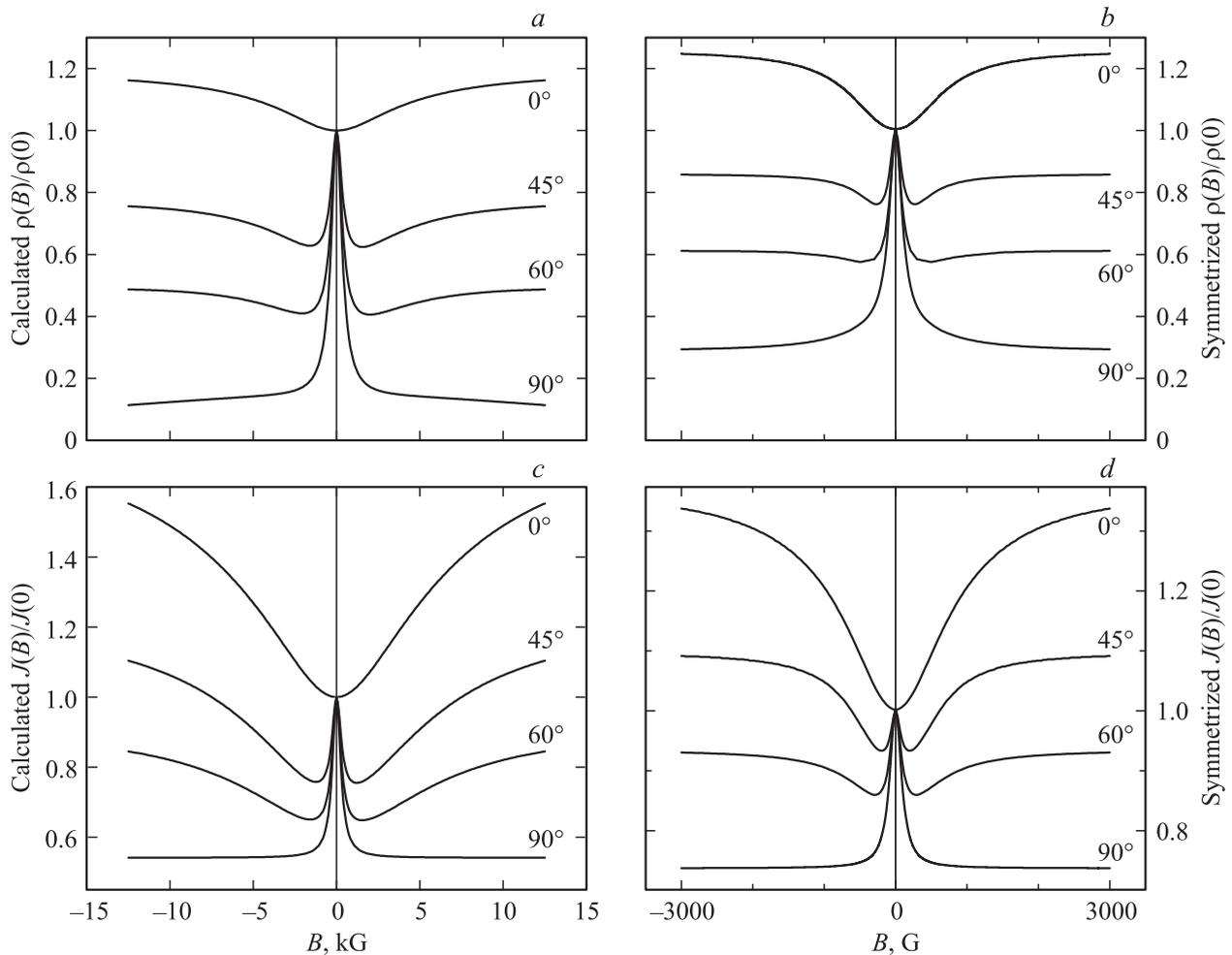
$$Y(Y + Z) = X. \quad (3)$$

Используя линейную связь (1h) между  $N_1$  и  $N_2$ , выразим безразмерную концентрацию двухэлектронных центров через безразмерную концентрацию свободных электронов

$$Y = \frac{L + MZ}{Z}, \quad L = -aX \frac{1 - P_i P_z}{1 - \mathbf{P}^2},$$

$$M = 1 - a \frac{\tau_h^*}{\tau_s} \frac{\mathbf{P}^2}{1 - \mathbf{P}^2}. \quad (4)$$

Подставляя выражение (4) для  $Y$  в (3), находим, что при заданном псевдовекторе  $\mathbf{P}$  величина  $Z$  удовлетворяет уравнению третьего порядка и может быть найдена аналитически с помощью формулы Кардано.



**Рис. 3.** Магнитопольевые зависимости степени круговой поляризации (а) и интенсивности (с) фотолюминесценции, рассчитанные в модели для момента ядра  $I = 1/2$  при следующих параметрах:  $\tau^* = (c_n N_c)^{-1} = 2$  ps,  $\tau_h^* = 30$  ps,  $\tau_s = 140$  ps,  $\tau_{sc} = 700$  ps,  $\tau_{n1} = \tau_{n2} = 150$  ps,  $N_c = 3 \cdot 10^{15}$  cm $^{-3}$ ,  $g = 1$ ,  $g_c = 2$ ,  $A = 17$   $\mu$ eV,  $P_i = 0.13$ ,  $W = 60$  mW. Угол наклона магнитного поля указан около каждой кривой справа. Аналогичные кривые на панелях *b* и *d* получены путем симметризации экспериментальных зависимостей, приведенных на рис. 1, *a* и *c*.

Второй этап решения заключается в отыскании  $S_c$  из системы уравнений (1d)–(1g). Вначале исключим  $S_{n2,\lambda}$  из (1f), используя (1g). Уравнения (1d)–(1f) при заданных величинах  $n$ ,  $N_1$  и  $\mathbf{P}$  представляют собой линейную систему относительно неизвестных  $S_{c\lambda}$ ,  $S_{n1,\lambda}$  и  $\Phi_{\lambda\eta}$ . Для ее решения можно воспользоваться стандартной процедурой численного решения линейных систем. Однако матричная структура системы допускает сведение задачи к последовательному решению систем уравнений размерности  $3 \times 3$ . Действительно, так как прямым действием магнитного поля на спин ядра пренебрегается, в каждое из уравнений (1e) входят компоненты  $\Phi_{\lambda\eta}$  с одним и тем же индексом  $\eta$ . Поэтому при заданных значениях  $S_{c\lambda}$ ,  $S_{n1,\lambda}$  можно решить девять уравнений (1e) последовательно для наборов  $(\Phi_{xx}, \Phi_{yx}, \Phi_{zx})$ ,  $(\Phi_{xy}, \Phi_{yy}, \Phi_{zy})$  и  $(\Phi_{xz}, \Phi_{yz}, \Phi_{zz})$ . Поскольку  $\Phi_{\lambda\eta}$  оказываются зависящими от  $S_{c,\lambda}$ ,  $S_{n1,\lambda}$  линейно, то подстановка найденных  $\Phi_{\lambda\eta}$  в (1f) дает линейную систему для  $S_{n1,\lambda}$ . Подстановка ее решения в (1d) приводит к системе для

$S_{c\lambda}$ . Таким образом, из системы уравнений (1d)–(1g) можно определить  $S_{c\lambda}$  как функцию  $\mathbf{P}$ . Подстановка этой зависимости в (1c) сводит задачу к отысканию решения системы трех нелинейных уравнений для компонент  $P_\lambda$ . На третьем этапе решение этой системы находится с помощью стандартной численной процедуры.

#### 4. Сравнение теории с экспериментом и обсуждение

На рис. 3, *a, c* представлены результаты расчета интенсивности  $J \propto np$  и степени круговой поляризации

$$\rho = \frac{2P'_z S_z}{n} \quad (5)$$

фотолюминесценции, проведенного для четырех различных углов  $\alpha$  между полем  $\mathbf{B}$  и осью  $z$ . Здесь  $P'$  — коэффициент деполаризации ФЛ [8]. Значения параметров, использованных в расчете, приведены в подписи к

рис. 3. Мощность накачки  $W$  (в единицах  $mW$ ) связана со скоростью оптической генерации  $G$  в формулах (1) соотношением  $G = 7.5 \cdot 10^{23} W \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ . Расчет показывает, что для ядер с  $I = 1/2$  в косом магнитном поле с  $\alpha \neq 0$  и  $\alpha \neq 90^\circ$  зависимости  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$  практически нечувствительны к инверсии направления поля: рассчитанные степени асимметрии

$$\rho_{\text{as}}(\mathbf{B}) = \frac{\rho(\mathbf{B}) - \rho(-\mathbf{B})}{2}, \quad J_{\text{as}}(\mathbf{B}) = \frac{J(\mathbf{B}) - J(-\mathbf{B})}{2}$$

не превышают несколько процентов и в масштабе рис. 3 незаметны. Поэтому, как указывалось выше, в настоящей работе мы сосредоточились на теоретическом описании симметричных составляющих экспериментальных кривых

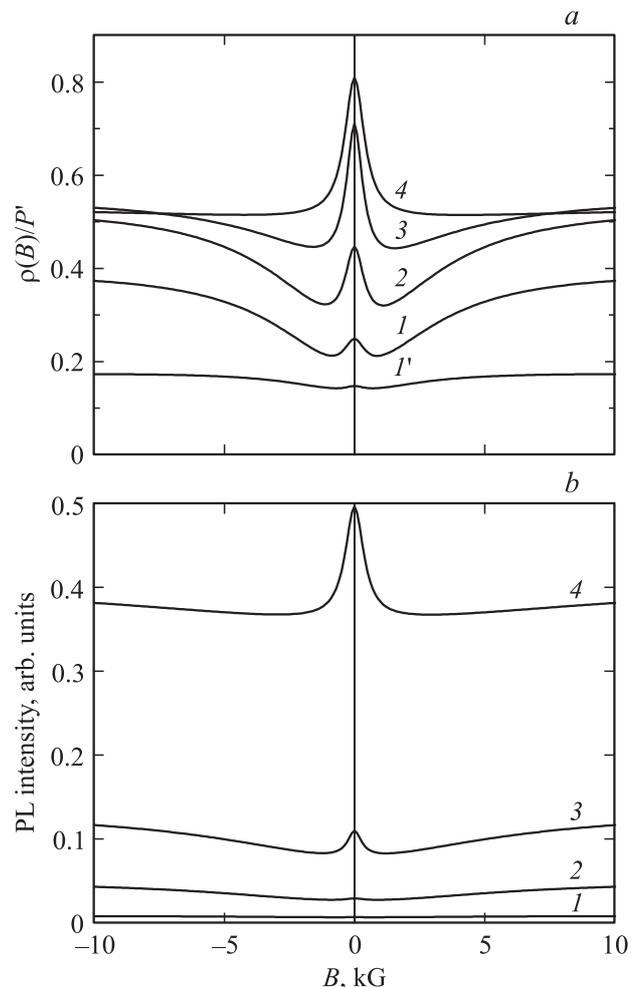
$$\rho_s(\mathbf{B}) = \frac{\rho(\mathbf{B}) + \rho(-\mathbf{B})}{2}, \quad J_s(\mathbf{B}) = \frac{J(\mathbf{B}) + J(-\mathbf{B})}{2}, \quad (6)$$

построенных на рис. 3, *b* и *d* с использованием данных рис. 1. Видно, что теория качественно воспроизводит эволюцию кривых  $\rho_s(\mathbf{B})$  и  $J_s(\mathbf{B})$  с изменением угла  $\alpha$  от  $0$  (продольное поле) до  $90^\circ$  (поперечное поле). В продольном поле эти кривые имеют минимум в точке  $B = 0$ . По мере отклонения поля от продольного направления поляризация и интенсивность проседают вниз, и одновременно из пологого минимума в окрестности точки  $B = 0$  вырастает узкий максимум, так что каждая кривая характеризуется одним максимумом и двумя минимумами, по одному слева и справа. В поперечном поле минимумы исчезают и остается только максимум при  $B = 0$ , обусловленный эффектом Ханле. Если расчетные зависимости на рис. 3 в целом удовлетворительно описывают эволюцию экспериментальных кривых по вертикали, имеется значительное расхождение между теорией и экспериментом по ширинам минимумов и максимумов. Это расхождение может быть связано с использованием упрощенной модели спин-зависимой рекомбинации, не учитывающей более сложной кинетики для дефектов с ядерным моментом  $I = 3/2$ .

Поведение оптической ориентации электронов в наклонном поле с двумя минимумами и острым максимумом в середине у кривых  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$  однозначно свидетельствует о сильной связи между спином одного локализованного электрона и спином ядра одного дефекта. Подчеркнем различие рассматриваемой здесь электронно-ядерной системы от исследованной в 1970–1980-х гг. системы электронов, локализованных на мелких донорных центрах и испытывающих контактное сверхтонкое взаимодействие с ядрами основной решетки полупроводника [15,17,18]: в последнем случае взаимодействие электронного спина со спином отдельного ядра является слабым, но из-за большого числа ядер ( $\sim 10^5$ ), охватываемых электронным облаком локализованного состояния, электронно-ядерная система оказывается сильно связанной. В ней большую роль играет охлаждение ядерной спиновой подсистемы; как следствие, на кривой магнитной деполяризации ФЛ в

наклонном поле, кроме центрального пика при  $\mathbf{B} = 0$ , имеется два дополнительных пика, один из которых примыкает к центральному пику, а второй сдвинут в сторону сильных полей. В зависимости от относительных знаков  $g$ -факторов электронов и ядер, дополнительные пики располагаются по разные стороны или по одну сторону относительно центрального пика; они возникают при значениях магнитного поля, при которых происходит компенсация внешнего поля ядерным.

Рис. 4 иллюстрирует изменение магнитопольевых кривых  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$ , рассчитанных при  $\alpha = 45^\circ$ , с ростом мощности накачки. При очень малой интенсивности циркулярно поляризованной лазерной накачки спины электронов на парамагнитных центрах остаются неполяризованными, и магнитное поле практически не влияет ни на поляризацию, ни на интенсивность ФЛ. Начиная с  $W = 20 \text{ mW}$  на кривой  $\rho(\mathbf{B})$  и  $W = 60 \text{ mW}$  на кривой  $J(\mathbf{B})$ , формируются узкий максимум при



**Рис. 4.** Зависимости степени круговой поляризации (а) и интенсивности (б) фотолуминесценции от магнитного поля, рассчитанные для угла наклона магнитного поля  $\alpha = 45^\circ$  при различных мощностях накачки:  $1'$  —  $4 \text{ mW}$ ,  $1$  —  $20 \text{ mW}$ ,  $2$  —  $40 \text{ mW}$ ,  $3$  —  $60 \text{ mW}$ ,  $4$  —  $100 \text{ mW}$ . Остальные расчетные параметры такие же, как на рис. 3.

$\mathbf{B} = 0$  и два минимума по бокам. При дальнейшем увеличении мощности  $W$  высота максимума возрастает, а при накачке  $W = 100 \text{ mW}$  на кривой  $\rho(\mathbf{B})$  остается один максимум. Для объяснения этого результата напомним, что при приближенном описании кривой  $\rho(\mathbf{B})$  боковые минимумы возникают при наложении двух лоренцевских контуров, нормального и инвертированного. Инвертированный контур обусловлен разрывом электронно-ядерного спин-спинового взаимодействия продольной составляющей магнитного поля. Как указывалось в работе [14], при большой интенсивности возбуждающего света время жизни  $\tau_c = (c_n n)^{-1}$  дефекта с одним электроном становится настолько коротким, что неопределенность  $\hbar/\tau_c = \hbar c_n n$  превышает константу сверхтонкого взаимодействия  $A$ , вследствие чего это взаимодействие ослабевает и подавляется уже в отсутствие магнитного поля. Поэтому при больших значениях  $W$  продольная составляющая магнитного поля не оказывает влияния на электронную спиновую поляризацию, см., например, рис. 1 в [14].

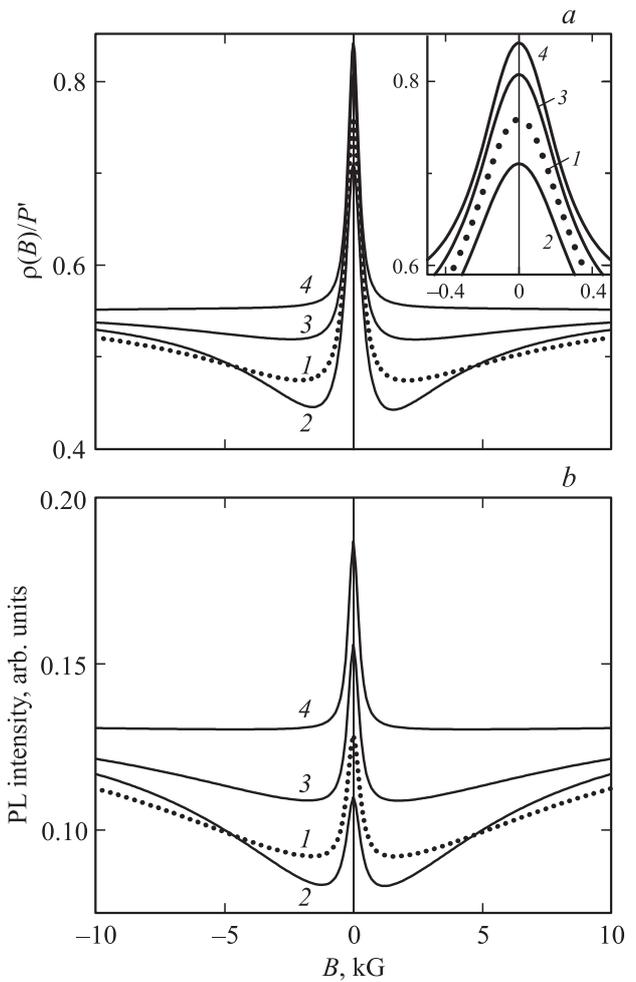
Чувствительность магнитопольевых зависимостей  $\rho(\mathbf{B})$  и  $J(\mathbf{B})$  к выбору времен ядерной релаксации проиллюстрирована на рис. 5. С этой целью мы выбрали определенные значения  $\alpha = 45^\circ$  и  $W = 60 \text{ mW}$ , положили  $\tau_{n1} = \tau_{n2}$  и провели расчет для четырех различных значений этих времен. Как показано в [14], при очень длинных временах ядерной релаксации в условиях стационарного оптического возбуждения спины ядер поляризуются таким образом, что обратное влияние ядер на спиновую поляризацию электронов исчезает, см., например, рис. 3, а в [14]. В этом случае включение продольного магнитного поля не влияет на  $\rho$  и  $J$ . Поэтому на кривых 4 (рис. 5), рассчитанных при  $\tau_{n1} = \tau_{n2} = 150\,000 \text{ ps}$ , имеется ярко выраженный максимум, а минимумы отсутствуют. Высота нормального и глубина инвертированного лоренцианов сопоставимы при  $15 \text{ ps} < \tau_{n1} = \tau_{n2} < 150 \text{ ps}$ . В сильном магнитном поле сверхтонкое взаимодействие разрывается, поперечная к полю составляющая спиновой поляризации локализованных электронов  $\mathbf{S}_{c\perp} \perp \mathbf{B}$  подавляется, и все четыре кривые на рис. 5, а или рис. 5, б сходятся друг к другу. Мы вывели формулу для круговой поляризации ФЛ после подавления магнитным полем поперечной составляющей поляризации  $\mathbf{S}_{c\perp}$ . С этой целью мы пренебрегли эффектом Ханле на свободных электронах, положив  $g = 0$ , и рассчитали  $\rho$  в отсутствие сверхтонкого взаимодействия. Приведем окончательный результат

$$\rho(\alpha; \mathbf{S}_{c\perp} = 0, A = 0) = \frac{P' P_i G}{n} \left( T' \cos^2 \alpha + T \sin^2 \alpha \right), \quad (7)$$

где времена  $T, T'$  определяются формулами

$$\frac{1}{T} = \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau_s}, \quad \frac{1}{T'} = \frac{1}{T} - \frac{T_c}{\tau T_c}, \quad \frac{1}{T_c} = \frac{1}{\tau_c} + \frac{1}{\tau_{sc}},$$

$\tau = (c_n N_1)^{-1}$ ,  $\tau_c = (c_n n)^{-1}$ , а остальные параметры введены в (1) и (5). Приближенная формула (7) для  $\rho$  в



**Рис. 5.** Магнитопольевые зависимости степени круговой поляризации (а) и интенсивности (б) фотолуминесценции, рассчитанные при угле наклона магнитного поля  $\alpha = 45^\circ$  и мощности накачки  $W = 60 \text{ mW}$  для четырех значений совпадающих времен ядерной спиновой релаксации  $\tau_{n1} = \tau_{n2}$ : 1 — 15 ps, 2 — 150 ps, 3 — 1500 ps, 4 — 150 00 ps. Остальные расчетные параметры такие же, как на рис. 3. На вставке части тех же зависимостей  $\rho(\mathbf{B})$  показаны в увеличенном масштабе.

магнитном поле, сильном для подавления электронно-ядерного спин-спинового взаимодействия, но слабого для проявления эффекта Ханле на фотоэлектронах в зоне проводимости, хорошо согласуется с численным решением системы уравнений (1).

## 5. Заключение

Нами проведено экспериментальное и теоретическое исследование оптической ориентации и спин-зависимой рекомбинации Шокли–Рида–Холла в полупроводнике в наклонном магнитном поле при нормальном падении на поверхность образца циркулярно поляризованного излучения. Эксперименты выполнены при комнатной температуре в твердых растворах GaAs<sub>1-x</sub>N<sub>x</sub>, в которых глубокими парамагнитными центрами, ответственны-

ми за спин-зависимую рекомбинацию, являются междоузельные дефекты смещения  $\text{Ga}^{2+}$ . Экспериментальные магнитопольевые зависимости круговой поляризации  $\rho(\mathbf{B})$  и интенсивности  $J(\mathbf{B})$  фотолюминесценции удается приближенно представить в виде суперпозиции двух лоренцевских контуров, нормального и инвертированного, полуширины на полувысоте (полуглубине) которых резко различаются и составляют  $\sim 100$  G и  $\sim 1000$  G соответственно. Такая зависимость  $\rho(\mathbf{B})$  или  $J(\mathbf{B})$  связана с изменением спинового состояния электронов, локализованных на парамагнитных центрах. Нормальный (узкий) лоренцевский контур обусловлен деполяризацией составляющей спиновой поляризации локализованных электронов, перпендикулярной к направлению внешнего магнитного поля (эффект Ханле), а инвертированный (широкий) лоренциан связан с подавлением сверхтонкого взаимодействия локализованного электрона с одним ядром дефекта и удлинением времени спиновой релаксации локализованных электронов. Соотношение между высотой одного лоренциана и глубиной другого определяется углом наклона поля  $\alpha$ . В продольном поле ( $\alpha = 0$ ) нормальный лоренциан отсутствует, а инвертированный лоренциан имеет наиболее глубокий минимум. Отклонение магнитного поля от направления возбуждения сопровождается появлением нормального лоренциана в виде узкого максимума при  $B = 0$  на фоне широкого инвертированного лоренциана. С увеличением наклона поля вклад узкого лоренциана возрастает, а широкого уменьшается, и при  $\alpha = 90^\circ$  остается только узкий лоренциан. В отличие от сверхтонкого взаимодействия электрона, связанного на мелком доноре, с большим числом ядер основной решетки, в изучаемой электронно-ядерной системе при изменении угла наклона магнитного поля на магнитопольевых зависимостях электронной поляризации не возникает дополнительного узкого пика, смещенного относительно точки  $B = 0$ . Этот результат демонстрирует, что в твердом растворе GaAsN сверхтонкое взаимодействие локализованного электрона с (одним) ядром парамагнитного центра остается сильным даже при комнатной температуре. Для теоретического описания эксперимента мы использовали модель спин-зависимой рекомбинации через глубокий парамагнитный центр с моментом ядра  $I = 1/2$ , ранее развитую нами для продольного поля, и обобщили ее на произвольный угол наклона магнитного поля. По сравнению с теорией для продольного поля, в модифицированной модели количество уравнений увеличивается с 11 до 25 в связи с тем, что в случае наклонного поля все компоненты матрицы плотности для дефектов с одним и двумя электронами оказываются отличными от нуля. Рассчитанные теоретические зависимости  $\rho(\mathbf{B})$ ,  $J(\mathbf{B})$  согласуются с приближенным описанием экспериментальных кривых в виде двух лоренцианов, второго узкого сдвинутого контура в расчете также не появляется.

Мы благодарны Т. Аману (T. Amand) и А.Ю. Ширяеву за полезные обсуждения.

## Список литературы

- [1] В.К. Калевич, Е.Л. Ивченко, М.М. Афанасьев, А.Ю. Ширяев, А.Ю. Егоров, В.М. Устинов, Б. Пал, Я. Масумото. Письма в ЖЭТФ **82**, 509 (2005).
- [2] V.K. Kalevich, A.Yu. Shiryayev, E.L. Ivchenko, A.Yu. Egorov, L. Lombez, D. Lagarde, X. Marie, T. Amand. Письма в ЖЭТФ **85**, 208 (2007).
- [3] X.J. Wang, I.A. Buyanova, F. Zhao, D. Lagarde, A. Balocchi, X. Marie, C.W. Tu, J.C. Harmand, W.M. Chen. Nature Mater. **8**, 198 (2009).
- [4] X.J. Wang, Y. Puttisong, C.W. Tu, A.J. Ptak, V.K. Kalevich, A.Yu. Egorov, L. Geelhaar, H. Riechert, W.M. Chen, I.A. Buyanova. Appl. Phys. Lett. **95**, 241 104 (2009).
- [5] F. Zhao, A. Balocchi, A. Kunold, J. Carrey, H. Carrère, T. Amand, N. Ben Abdallah, J.C. Harmand, X. Marie. Appl. Phys. Lett. **95**, 241 104 (2009).
- [6] F. Zhao, A. Balocchi, G. Truong, T. Amand, X. Marie, X.J. Wang, I.A. Buyanova, W.M. Chen, J.C. Harmand. J. Phys.: Condens. Matter **21**, 174 211 (2009).
- [7] Y. Puttisong, X.J. Wang, I.A. Buyanova, H. Carrère, F. Zhao, A. Balocchi, X. Marie, C.W. Tu, W.M. Chen. Appl. Phys. Lett. **96**, 052 104 (2010).
- [8] E.L. Ivchenko, V.K. Kalevich, A.Yu. Shiryayev, M.M. Afanasiev, Y. Masumoto. J. Phys.: Condens. Matter **22**, 465 804 (2010).
- [9] V.K. Kalevich, A.Yu. Shiryayev, E.L. Ivchenko, M.M. Afanasiev, A.Yu. Egorov, V.M. Ustinov, Y. Masumoto. Physica B **404**, 4929 (2009).
- [10] V.K. Kalevich, M.M. Afanasiev, A.Yu. Shiryayev, A.Yu. Egorov. Phys. Rev. B **85**, 035 205 (2012).
- [11] В.К. Калевич, М.М. Афанасьев, А.Ю. Ширяев, А.Ю. Егоров. Письма в ЖЭТФ **96**, 635 (2012).
- [12] Y. Puttisong, X.J. Wang, I.A. Buyanova, L. Geelhaar, H. Riechert, A.J. Ptak, C.W. Tu, W.M. Chen. Nature Commun. **4**, 1751 (2013).
- [13] C. Sandoval-Santana, A. Balocchi, T. Amand, J.C. Harmand, A. Kunold, X. Marie. Phys. Rev. B **90**, 115 205 (2014).
- [14] E.L. Ivchenko, L.A. Bakaleinikov, V.K. Kalevich. Phys. Rev. B **91**, 205 202 (2015).
- [15] Optical Orientation / Eds F. Meier, B. Zakharchenya. North-Holland, Amsterdam (1984).
- [16] Spin Physics in Semiconductors / Ed. M.I. Dyakonov. Springer, Berlin (2008).
- [17] М.И. Дьяконов, В.И. Перель, В.Л. Берковиц, В.И. Сафаров. ЖЭТФ **67**, 1912 (1974).
- [18] Б.П. Захарченя, В.К. Калевич, В.Д. Кульков, В.Г. Флейшер. ФТТ **23**, 1387 (1981).
- [19] A.Yu. Egorov, V.K. Kalevich, M.M. Afanasiev, A.Yu. Shiryayev, V.M. Ustinov, M. Ikezawa, Y. Masumoto. J. Appl. Phys. **98**, 013 539 (2005).
- [20] В.Д. Кульков, В.К. Калевич. ПТЭ **5**, 196 (1980).