

УДК 621.315.592
© 1990

МЕХАНИЗМ СПИНОВОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ ЗАРЯЖЕННЫХ ПАРАМАГНИТНЫХ ЦЕНТРОВ В ПОЛУПРОВОДНИКАХ ПРИ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ С НОСИТЕЛЯМИ ТОКА

Н. С. Аверкиев, В. С. Вихнин

Развита теория стационарной спиновой поляризации заряженных парамагнитных примесей в полупроводниках под действием неполяризованной оптической подсветки. Эффект связан с обменным взаимодействием между спином парамагнитной примеси и спином захваченного на орбиту большого радиуса электрона. Такое взаимодействие приводит к появлению в запрещенной зоне уровней комплекс заряженная парамагнитная примесь+электрон. Спиновая поляризация возникает в результате спин-зависящих захватов электронов на такие уровни и избирательной спин-решеточной релаксации на них. Показано, что определяющую роль при такой релаксации играет спин-решеточное взаимодействие парамагнитного остова комплекса. Рассмотренная модель позволила объяснить основные результаты эксперимента для $\text{Si} : \text{Cr}^+$.

Исследование спиновой поляризации (СП) локальных центров в полупроводниках показало, что эффект СП возникает и при действии неполяризованной оптической подсветки [1, 2]. Здесь можно выделить две группы актуальных систем. В первой из них СП возникает за счет спин-зависящего захвата и спин-зависящих релаксационных переходов с участием триплетного и синглетного состояний локального центра. Однако подобная ситуация является достаточно специальной, так как требуется существование триплетного и синглетного хорошо локализованных состояний, возникающих при перезарядке центров. Другая группа систем, проявляющих эффект СП в условиях действия неполяризованной оптической подсветки, представляет собой парамагнитные заряженные ионы в полупроводнике, обладающие относительно невысокой скоростью спин-решеточной релаксации (СРР). Как предполагалось в [2, 3], здесь эффект СП обязан промежуточным обменно-связанным состояниям парамагнитный заряженный ион+электрон (дырка) на орбите большого радиуса (обменным компаунд-состояниям) [4]. Характерным примером такой ситуации является наблюдение СП при действии неполяризованной оптической подсветки в кремнии с примесью Cr^+ , которая проявляется в инверсии отдельных ЭПР линий тонкой структуры Cr^+ [2].

Для объяснения спиновой поляризации [2] были предложены три модели. Во-первых, обменное рассеяние свободного электрона на внешнем электроны в обменном компаунд-состоянии. Здесь при различных спиновых расщеплениях в магнитном поле для внешнего электрона и электрона в зоне проводимости возникал эффект СП, аналогичный эффекту Оверхаузера [5]. Однако для объяснения экспериментов по СП в $\text{Si} : \text{Cr}^+$ в рамках этой модели требуется необычно большое значение константы тонкого взаимодействия для остова (иона Cr^+) обменного компаунд-состояния.

Вторая модель [3], которая разрабатывалась параллельно, опиралась на избирательную релаксацию в обменном компаунд-состоянии, а также на зависящие от спина процессы его образования и распада. Здесь СП

возникла главным образом в результате спин-зависящего захвата в обменное компаунд-состояние с дискретным спектром и частично происходящей в нем избирательной СРР на обменных расщеплениях, действие которой ограничивалось спин-зависящим распадом. В результате продукты распада, в том числе и парамагнитный остов компаунд-состояния, оказываются в неравновесных по спину состояниях.

В третьей модели [6, 7] в отличие от второй рассматривался спин-зависящий захват в делокализованные состояния сплошного спектра обменного компаунд-состояния. (Электрон, взаимодействующий обменным образом с парамагнитным кулоновским остовом, находится в делокализованном зонном состоянии). Эта модель по существу является обобщением модели СП Фрида [8] на случай $S > 1/2$, актуальный для Cr^+ в кремнии. Однако здесь игнорируется то весьма важное обстоятельство, что эффект СП возникает за счет относительно слабого (из-за делокализации носителя) обменного взаимодействия, матричные элементы которого оказываются меньше двух характерных релаксационных параметров \hbar/τ_S и \hbar/τ_I . Во-первых, скорость спиновой релаксации делокализованного носителя τ_S^{-1} (в кремнии при $T=4.2$ К для электронов в зоне проводимости $\tau_S \approx 10^{-7}$ с [9]). Это приводит к равновесной ситуации по спиновым степеням свободы в обменных компаунд-состояниях сплошного спектра на промежутках времени, актуальных для формирования СП, что и уничтожает СП. Во-вторых, скорость захвата носителя τ_I^{-1} в обменное компаунд-состояние дискретного спектра (благодаря эффективному каскадному механизму [10]). В результате время жизни обменного компаунд-состояния сплошного спектра оказывается существенно короче времени, определяющего формирование в них СП. Более того, в условиях справедливости обсуждаемых неравенств обменные компаунд-состояния сплошного спектра вообще не реализуются вследствие релаксационного подавления [11] когерентных обменно-связанных состояний. Заметим, что для применения модели [6, 7] к локализованным компаунд-состояниям необходимо учесть быстрые переходы между различными спиновыми мультиплетными компаундами, т. е. использовать модель [3], чему и посвящена настоящая работа.

Таким образом, для объяснения эффекта спиновой поляризации Cr^+ в кремнии при действии неполяризованной оптической подсветки необходимо принимать во внимание быстрые переходы электрона из зоны проводимости в обменные компаунд-состояния дискретного спектра. В настоящей работе будет рассмотрен релаксационный механизм СП в рамках второй из обсуждавшихся моделей и будет показано, что такой механизм непротиворечивым образом может объяснить основные экспериментальные данные.

1. Механизм спиновой поляризации при захвате носителей тока в обменные компаунд-состояния дискретного спектра

Обменное взаимодействие электронов $3d^5$ -оболочки со спином $S=5/2$ и внешним электроном,¹ захваченным на орбиту большого радиуса (спин $s=1/2$) в компаунд-состоянии приводит к обменно-связанным мультиплетам с полными моментами $J=2$ и $J=3$. Будем предполагать ферромагнитный характер этого взаимодействия, что означает, что мультиплет основного состояния соответствует $J=3$.

Исследуемая модель СП [3] опирается на зависящие от спина захваты свободных электронов в возбужденный обменный мультиплет $J=2$ компаунд-состояния, последующую избирательную по спину релаксацию, соответствующую переходам между обменными мультиплетными $J=2$ и

¹ Предполагается, что волновая функция внешнего электрона в рамках метода эффективной массы симметрична по долинам зоны проводимости и соответствует представлению A_1 точечной группы симметрии центра T_d .

$J=3$ и зависящие от спина распада компаунда из этих состояний. Возможность СП связана с тем, что избирательная релаксация в обменном компаунд-состоянии может происходить для части каналов СРР со скоростью, превосходящей скорость его распада, а для другой части каналов СРР — уступающей скорости его распада. В результате продукты распада обменного компаунд-состояния оказываются неравновесными по спиновым степеням свободы. Так возникает СП для остова компаунда иона Cr^+ . Схема появления СП в исследуемом случае представлена на рисунке.

В качестве механизмов захвата в компаунд-состояние и его распада мы рассмотрим каскадный механизм захвата и распада при захвате ком-

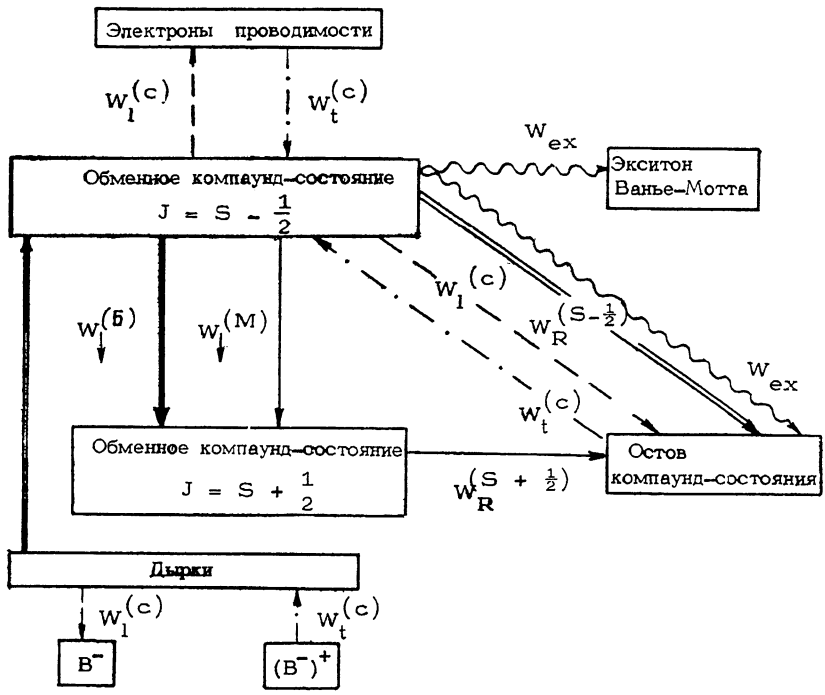


Схема релаксационного механизма спиновой поляризации.

$W_{\downarrow}^{(b)}, W_{\downarrow}^{(m)}$ — скорости спин-решеточной релаксации между мультиплетами с $J=S-1/2$ и $J=S+1/2$ по быстрым и медленным каналам релаксации; W_t — скорость каскадного захвата электрона проводимости в компаунд-состояние с $J=S-1/2$; $W_1^{(c)}$ — скорость кросс-релаксации с одновременным распадом компаунд-состояния с $J=S-1/2$, переходом внешнего электрона компаунда в зону проводимости и захватом дырки на ион B^- ; $W_1^{(c)}$ — скорость кросс-релаксации с одновременным захватом электрона из зоны на орбиту большого радиуса компаунд-состояния и переходом дырки из локализованного на B^- состояния в валентную зону; W_{ex} — скорость распада компаунд-состояния с $J=S-1/2$ с образованием экситона Ванье-Мотта и остова компаунд-состояния (со спином S); $W_R^{(S+1/2)}, W_R^{(S-1/2)}$ — скорости рекомбинации дырки с внешним электроном компаунд-состояния в $(S+1/2)$ и $(S-1/2)$ состояниях.

паундом свободной дырки с последующими либо рождением экситона Ванье-Мотта, либо рекомбинацией дырки и электрона. Кроме этого, могут быть актуальны кросс-релаксационные процессы, обусловленные присутствием в кремнии центров B^- . Такие заряженные центры будут эффективно захватывать фотовозбужденные дырки. В результате становятся возможными быстрые кросс-релаксационные процессы захвата в обменные компаунд-состояния и их распад. При этом электрон из зоны проводимости захватывается в компаунд-состояние, а дырка переходит из локализованного на ионе B^- состояния в валентную зону. Обратный кросс-релаксационный процесс представляет собой возможно наиболее эффективный механизм распада компаунд-состояния с образованием центра Cr^+ и свободного электрона. Подобные процессы захвата и распада имеют различную эффективность для мультиплетов с $J=2$ и $J=3$ и тем самым являются спин-зависящими.

Следует отметить также и другой механизм спин-зависящего распада компаунд-состояния: образование на нем связанного экситона и последующей его аннигиляции, сопровождающейся выбросом его внешнего электрона в зону проводимости.

Главную роль в формировании СП в исследуемом случае играет избирательная СРР между обменно-связанными мультиплетами, поскольку скорости этих процессов по быстрым каналам оказываются существенно выше скоростей спин-зависящих процессов захвата в компаунд и его распада, хотя последние также следует принимать во внимание.

Перейдем к анализу избирательной спин-решеточной релаксации в обменном компаунд-состоянии дискретного спектра. Здесь актуальны три механизма. Во-первых, спин-решеточное взаимодействие спина S остова компаунда — парамагнитного центра S_t^+

$$\mathcal{H}_1 = G_{ijkl} \{S_i S_j\} e_{kl} + g_{ijkl} \beta H_i S_j e_{kl}, \quad (1)$$

$\hat{\epsilon}$ — тензор деформаций; \hat{G} , \hat{g} — тензоры параметров спин-решеточного взаимодействия. Во-вторых, модуляция деформациями решетки g -фактора захваченного на орбиту большого радиуса электрона со спином $s=1/2$.

$$\mathcal{H}_2 = \tilde{g}_{ijkl} \beta H_i S_j e_{kl}. \quad (2)$$

Наконец, модуляция деформациями решетки обменного взаимодействия в компаунд-состоянии, которая за счет анизотропных вкладов

$$\mathcal{H}_3 = \sum_{i \neq j} J_{ijkl} S_i S_j e_{kl} \quad (3)$$

будет также приводить к спин-решеточной однофононной релаксации (изотропные $i=j$ вклады не вызывают релаксационные переходы). В дальнейшем мы будем анализировать лишь эффект первого слагаемого в спин-фононном гамильтониане (1), которое является, как показывают оценки, доминирующим. Это связано с тем, что модуляция g -фактора деформациями решетки приводит к спин-фононным константам, существенно уступающим эффекту динамического кристаллического поля (первое слагаемое в (1)). С другой стороны, спиновая релаксация из-за модуляции обменного взаимодействия (3) ослаблена. В этой ситуации спин-релаксационный эффект возможен лишь благодаря совместному действию спин-орбитального взаимодействия, смешиванию полем деформации состояний из различных энергетических зон и обменному взаимодействию электрона на орбите большого радиуса с парамагнитным остовом. Подобный эффект мал в меру малости произведения двух малых факторов: отношения межзонного матричного элемента спин-орбитального взаимодействия к соответствующему энергетическому зазору между зонами и отношения деформационного межзонного матричного элемента к разности энергий соответствующих зон. В результате он уступает вкладу первого слагаемого в (1). Отметим, что актуальные микроскопические механизмы, дающие основной вклад в величине G_{ijkl} , рассмотрены в [12, 13].

Отличительной чертой рассматриваемой модели является то, что спин-релаксационные переходы по «быстрым» каналам между компаунд-состояниями $J=2$ и $J=3$ под действием спин-фононного взаимодействия (первое слагаемое в (1)) осуществляются со значительно большей скоростью W_{\downarrow} , чем процессы захвата в компаунд-состояние $W_{\uparrow}^{(2)}$ и $W_{\uparrow}^{(3)}$ (мультиплеты с $J=2$ и $J=3$ соответственно), процессы его распада $W_{\downarrow}^{(2)}$ и $W_{\downarrow}^{(3)}$, а также чем процессы СРР без изменения J (со скоростью T_1^{-1}). Здесь индекс « i » нумерует различные параллельные каналы процессов. Действительно, оценки показывают, что при обычно реализуемых значениях константы $s-d$ -обменного взаимодействия [5] обменное расщепление Δ между состояниями с $J=2$ и $J=3$ составляет ~ 10 мэВ. В этом случае спиновая релаксация по разрешенным каналам на этом расщеплении происходит вследствие взаимодействия, описываемого оператором однофононного спин-

решеточного взаимодействия. Для кристаллов кубической симметрии оно может быть записано в виде

$$\mathcal{H}_{\text{CPR}} = G_{44} \left[\frac{S_x^2 - S_y^2}{i} e_{xy} + (e_{xx} - ie_{yz}) \frac{\{S_x S_+\}}{\sqrt{2}} + (e_{xx} + ie_{yz}) \frac{\{S_x S_-\}}{\sqrt{2}} \right] + \\ + (G_{11} - G_{12}) \left[3 \left(S_z^2 - \frac{1}{3} S(S+1) \right) \left(e_{zz} - \frac{1}{3} S \rho \hat{e} \right) + (S_x^2 + S_y^2) (e_{xx} - e_{yy}) \right]. \quad (4)$$

Здесь G_{11} , G_{12} , G_{44} — соответствующие константы спин-фононного взаимодействия [14] для остова компаунд-состояния. В результате с учетом того, что для Cr^+ в кремнии $0.86 G_{11}^2 + 2.25 G_{44}^2 = 1.32 \cdot 10^{-32}$ (эрг)² [12], приходим к значениям вероятностей перехода с мультиплета $J=2$ на мультиплет $J=3$ для «быстрых» каналов порядка $W_{\downarrow} \approx 10^6 \text{ с}^{-1}$. Скорости всех прочих процессов с участием обменного компаунд-состояния уступают W_{\downarrow} на несколько порядков. Например, для актуальной концентрации фотозобужденных электронов $\sim 10^8 \text{ см}^{-3}$ и сечения каскадного захвата [10] $\sigma_s = 10^{-12} \text{ см}^{-2}$ при $T=4 \text{ К}$ $W_s \approx 10^3 \text{ с}^{-1}$, а для скорости CPR Cr^+ при $T=4 \text{ К}$ $T_1^{-1} \approx 1 \text{ с}^{-1}$ [12]. Это и обеспечивает быструю избирательную релаксацию между термами $J=2$ и $J=3$ по разрешенным каналам и в конечном счете эффект СП.

Необходимым условием формирования сигнала СП является выполнение следующих неравенств:

$$W_{\downarrow} \gg W_p^{(2)}, W_p^{(3)}, \\ W_s^{(2)}, W_s^{(3)} \gg T_1^{-1}, \tilde{W}_{\downarrow}, \quad (5)$$

где \tilde{W}_{\downarrow} — скорость спин-решеточной релаксации между состояниями $J=2$ и $J=3$ по запрещенным каналам. Заметим, что малость T_1^{-1} обеспечивается использованием в эксперименте достаточно низких температур $T \leq 4 \text{ К}$. В дальнейшем мы будем также полагать выполнение неравенства $\tau_s^{-1} \gg W_s^{(2)}, W_s^{(3)}$, что соответствует отсутствию СП захватываемого в компаунд свободного электрона в условиях стационарной оптической подсветки. Выполнение неравенств (5) позволяет легко получить решения кинетических уравнений для исследуемой многоуровневой системы (включающей двадцать обменно-связанных состояний компаунда).

Общая формулировка модели СП требует одновременного учета спин-зависящего захвата в компаунд-состояние как с произвольными и неравными нулю вероятностями захвата в мультиплеты с $J=2$ ($W_s^{(2)}$) и $J=3$ ($W_s^{(3)}$), так и с зависимостью захвата от проекций спинов остова компаунда и захватываемого носителя тока, быстрой спин-решеточной релаксации между состояниями с $J=2$ и $J=3$, и спин-зависящего распада. Эту задачу мы рассмотрим в двух предельных случаях. 1) Когда в процессе каскадного захвата из-за интенсивного обменного рассеяния в примесной зоне носителей, захваченных на заряженные центры Cr^+ , возникает эффективная спиновая релаксация, скорость которой сравнима со скоростью каскадного захвата. В результате при захвате теряется спиновая память по проекциям спинов остова и носителя тока, а спиновая зависимость захвата оказывается связанной лишь с неравенством вероятностей $W_s^{(2)} \neq W_s^{(3)}$. 2) Будем полагать, что процессами потери спиновой памяти по проекциям спина в условиях каскадного захвата можно пренебречь, однако каскадный захват осуществляется преимущественно на возбужденный обменно-связанный мультиплет (с $J=2$). Этот предельный случай «2» соответствует максимально возможному в данной модели проявлению спиновой зависимости захвата (максимально возможной зависимости от проекций спинов, причем $W_s^{(2)} \gg W_s^{(3)}$). Последнее неравенство может выполняться в условиях значительных энергетических зазоров ΔE между обменно-связанными мультиплетами и ближайшим к ним уровнем, через который осуществляется каскадный захват, с учетом вероятности однофононных переходов между состояниями центра большого радиуса a^* с излучением фононов, которая пропорциональна $(\Delta E)^3 [1 + (a^* \Delta E / \hbar v)^2]^{-4}$.

2. Кинетика спиновой поляризации

Исследуем сначала предельный случай «1». Кинетические уравнения для соответствующих состояний i (для $J=2$) и j (для $J=3$), которые связаны разрешенным спин-релаксационным переходом, имеют вид

$$\dot{n}_i = -n_i W_p^{(2)} - n_i \sum_{j'} W_{\downarrow}^{(ij')} + (1/5) n_{Cr+} W_{\uparrow}^{(2)}, \quad (6)$$

$$\dot{n}_j = -n_j W_p^{(3)} + \sum_i n_i W_{\downarrow}^{(ij)} + (1/7) n_{Cr+} W_{\uparrow}^{(3)}. \quad (7)$$

Здесь n_{Cr+} — исходная концентрация парамагнитных ионов Cr^+ . В (6), (7) мы не учитываем процессы с тепловым возбуждением состояний с $J=2$, так как $(W_{\uparrow}/W_{\downarrow}) = \exp(-\Delta/kT) \ll 1$ при $\Delta=10$ мэВ, $T=4$ К. Кроме того, специального обсуждения требует использование упрощающего фактора в (6), (7), связанного с тем, что в реальном случае системы заряженных парамагнитных центров с концентрацией $n_{Cr+} \geq 10^{15}$ см⁻³ представляется возможным использовать единую вероятность захвата в состояния с различными проекциями полного спина одного и того же спинового мультиплетта (когда зависимость от спина процесса захвата оказывается лишь связанной с $W_{\uparrow}^{(2)} \neq W_{\uparrow}^{(3)}$). Это обстоятельство связано с тем, что при реальных значениях n_{Cr+} имеется процесс, приводящий к потере спиновой памяти по проекциям спина в условиях захвата носителя тока, а именно процесс обменного рассеяния захватываемых электронов на заряженных парамагнитных центрах [4]. Действительно, в области узкого горла каскадного захвата, которая соответствует перекрытию промежуточных мелких состояний, участвующих в захвате, образуется примесная зона. Захватываемые электроны в примесной зоне могут испытывать обменное рассеяние на заряженных парамагнитных центрах, так как сечение подобного обменного рассеяния, как показано в [4], оказывается того же порядка величины, что и сечение каскадного захвата, а при достаточном обменном взаимодействии может и превосходить последнее. Действительно, здесь сечение обменного рассеяния $\sigma_{op} \simeq \gamma \sigma_{op}^{(0)}(E_i/kT)$, где E_i — энергия ионизации мелкого донора $\gamma > 1$; $\sigma_{op}^{(0)}$ — сечение обменного рассеяния электрона на нейтральном глубоком центре с тем же эффективным обменным взаимодействием, что и для заряженного центра. Эффективное обменное рассеяние будет приводить к спин-релаксации и электронов, и заряженных парамагнитных центров при каскадном захвате. При этом важно, что на парамагнитные заряженные центры будут захватываться и электроны, не участвовавшие в обменном рассеянии и не изменившие свое спиновое состояние, в то время как соответствующие парамагнитные заряженные центры могли изменить свое спиновое состояние, и наоборот. В результате подобной спин-релаксации теряется различие в вероятностях захвата в компаунд-состояние с различными проекциями полного спина, но сохраняется для вероятностей захвата в компаунд-состояния с различным полным спином, что связано с их существенно различной глубиной залегания. Это обстоятельство оправдывает использование обсуждаемого приближения в уравнениях (6), (7). Отметим, что даже в том случае, когда обменное взаимодействие носителя тока с заряженным парамагнитным центром относительно невелико ($\sigma_{op} \ll \sigma_s$), так что спиновая память в [процессе каскадного захвата не теряется, эффект спиновой поляризации меняется несущественно. Хотя в этом случае вероятности захвата в состояния с различными проекциями полного спина одного и того же спинового мультиплетта различны, результирующая спиновая поляризация, как будет показано в разделе 4, изменяется мало по сравнению с предыдущим случаем.

В стационарной ситуации $\dot{n}_i = \dot{n}_j = 0$ из (6), (7) находим

$$n_i = \frac{1}{5} \frac{n_{Cr+} W_{\uparrow}^{(2)}}{W_p^{(2)} + \sum_{j'} W_{\downarrow}^{(ij')}} \quad (8)$$

$$n_i = \sum_i \frac{W_{\downarrow}^{(i,j)} (1/5) n_{Cr^+} + W_s^{(2)}}{W_p^{(3)} [W_p^{(2)} + \sum_{j'} W_{\downarrow}^{(i,j')}]} + \frac{1}{7} n_{Cr^+} \frac{W_s^{(3)}}{W_p^{(3)}}. \quad (9)$$

Кинетическое уравнение для искомой населенности n_M M -го спинового состояния остова (иона Cr^+) в условиях действия исследуемого механизма СП имеет вид

$$n_M = W_p^{(2)} \sum_{i=1}^5 |\alpha_{M,i}^{(2)}|^2 n_i + W_p^{(3)} \sum_{j'=1}^7 |\alpha_{M,j'}^{(3)}|^2 n_{j'} - n_M (W_s^{(2)} + W_s^{(3)}). \quad (10)$$

Здесь $\alpha_{M,i}^{(2)}$, $\alpha_{M,j'}^{(3)}$, — коэффициенты Клебша—Гордона для волновых функций компаунда с $J=2$ и $J=3$ соответственно, описывающих вклад спиновых волновых функций с M -й проекцией спина остова в i (j) волновую функцию компаунд-состояния. В (10) в силу выполнения неравенств (5) для актуальных промежутков времени опущено слагаемое, описывающее стремление n_M к термодинамическому среднему со скоростью T_1^{-1} . В стационарном состоянии из (10) с учетом (8), (9) получаем

$$n_M = \sum_{i=1}^5 |\alpha_{M,i}^{(2)}|^2 \frac{1}{5} n_{Cr^+} \frac{W_s^{(2)}}{W_s^{(2)} + W_s^{(3)}} \frac{W_p^{(2)}}{W_p^{(2)} + \sum_{j'} W_{\downarrow}^{(i,j')}} + \\ + \sum_{j=1}^7 |\alpha_{M,j}^{(3)}|^2 \sum_i \left(\frac{W_{\downarrow}^{(i,j)}}{W_p^{(2)} + \sum_{j'} W_{\downarrow}^{(i,j')}} \right) \frac{1}{5} n_{Cr^+} \frac{W_s^{(2)}}{W_s^{(2)} + W_s^{(3)}} + \\ + \frac{n_{Cr^+}}{6} \frac{W^{(3)}}{W_s^{(2)} + W_s^{(3)}}. \quad (11)$$

Отметим, что первые два слагаемых в (11) связаны с процессами захвата электрона из зоны проводимости в состояние с $J=2$, в то время как последнее (не приводящее к СП) — в состояние с $J=3$. Учитывая неравенство $\sum_j W_{\downarrow}^{(i,j)} \gg W_p^{(2)}$ и опуская неактуальное третье слагаемое в (11), получаем

$$n_M = \frac{n_{Cr^+}}{5} \sum_{i,j=1}^{5,7} \frac{|\alpha_{M,j}^{(3)}|^2 W_{\downarrow}^{i,j}}{\sum_{j'} W_{\downarrow}^{(i,j')}} \frac{W_s^{(2)}}{W_s^{(2)} + W_s^{(3)}}. \quad (12)$$

Выражение (12) описывает эффект СП в рамках используемой модели. Видно, что СП здесь полностью определяется соотношением скоростей

Скорости спин-решеточной релаксации между состояниями $|J=2\rangle$ и $|J=3\rangle$ обменного компаунда

j	i				
	2	1	0	-1	-2
3	$\frac{20}{3} a$	$\frac{10}{3} (2+a)$	0	0	0
2	$\frac{40}{3}$	0	$\frac{10}{3} (2+a)$	0	0
1	8a	8	$\frac{8}{3} a$	2(2+a)	0
0	$\frac{2}{2} (2+a)$	$\frac{64}{3} a$	0	$\frac{64}{3}$	$\frac{2}{3} (2+a)$

Примечание. Скорости СРР для $\Delta \gg kT$ приведены в единицах $\Delta^3 (G_{11} - G_{12})^2 / 2\pi^4 \rho v^4$, где ρ — плотность кристалла, v — средняя скорость звука. Параметр $a = G_{14}^2 / (G_{11} - G_{12})^2$. Скорости СРР удовлетворяют соотношению $W_{\downarrow}^{(i,j)} = W_{\downarrow}^{(-i,-j)}$.

спин-решеточной релаксации между различными спиновыми мультиплетами в компаунд-состоянии, а также $(W_{\frac{3}{2}}^{(3)}/W_{\frac{3}{2}}^{(2)})$.

Дальнейший расчет СП требует вычисления вероятностей однофононных переходов $W_{\downarrow}^{(i,j)}$, который был проведен с использованием (4) (см. таблицу). Затем выражения для $W_{\downarrow}^{(i,j)}$ с учетом (12) для n_M были записаны в виде функций от констант спин-фононного взаимодействия остова компаунда $G_{11}-G_{12}$ и G_{44} , величины которых фактически определяют СП. Эксперимент по исследованию спин-решеточной релаксации Cr^+ в кремнии [12] не дает возможности определить отношение этих констант, однако следует отметить, что для примеси внедрения Fe^0 в Si $[(G_{11}-G_{12})/G_{44}]^2 \approx 16$ [14].

Мы провели анализ эффекта СП для произвольного соотношения $(G_{11}-G_{12})^2$ и G_{44}^2 . Оказалось, что структура наблюдаемого спектра ЭПР в Si : Cr^+ при действии неполяризованной оптической подсветки находит объяснение в ситуации доминирующего вклада спин-решеточного взаимодействия парамагнитного остова компаунда с тетрагональными деформациями, т. е. при $(G_{11}-G_{12})^2 \gg G_{44}^2$. В связи с этим в дальнейшем мы приведем выражения для населенностей спиновых уровней Cr^+ и проанализируем угловую зависимость СП лишь для этого случая.

3. Обсуждение результатов. Угловая зависимость спиновой поляризации

Рассмотрим актуальную для случая наблюдения СП Cr^+ в кремнии ориентацию внешнего магнитного поля в плоскости [100], когда \mathbf{H} составляет малый угол $\vartheta \ll 1$ (в дальнейшем мы покажем, что достаточным условием справедливости приближения является $\vartheta < 1/3$). Из (12) с учетом вероятностей перехода $W_{\downarrow}^{(i,j)}$, вычисленных на основе (4) и таблицы, находим для разностей населенностей спиновых состояний Cr^+ ($S=5/2$)

$$n_{3/2} - n_{1/2} = \frac{n_{\text{Cr}^+}}{5} (-0.80 + 1.14\vartheta^2) \frac{W_{\frac{3}{2}}^{(2)}}{W_{\frac{3}{2}}^{(2)} + W_{\frac{3}{2}}^{(3)}}, \quad (13)$$

$$n_{5/2} - n_{3/2} = \frac{n_{\text{Cr}^+}}{5} (0.87 - 0.50\vartheta^2) \frac{W_{\frac{5}{2}}^{(2)}}{W_{\frac{5}{2}}^{(2)} + W_{\frac{5}{2}}^{(3)}}. \quad (14)$$

В (13), (14) мы полагали без ограничения общности, что $W_{\frac{3}{2}}^{(2)} \sim W_{\frac{3}{2}}^{(3)}$. В рамках используемых приближений (в частности, $kT \gg g_c \beta H$, g_c — g -фактор электрона проводимости) выполняется $n_{1/2} = n_{-1/2}$.

Из (13), (14) следует, что рассмотренная модель СП приводит к инверсии населенностей для переходов $3/2 \leftrightarrow 1/2$ и $-5/2 \leftrightarrow -3/2$ и сохранению обычного знака разности населенностей для переходов $-3/2 \leftrightarrow -1/2$ и $5/2 \leftrightarrow 3/2$. При этом интенсивности сигналов излучения (поглощения) для $3/2 \leftrightarrow 1/2$ ($-3/2 \leftrightarrow -1/2$) превосходят интенсивности сигналов излучения (поглощения) для $-5/2 \leftrightarrow -3/2$ ($5/2 \leftrightarrow 3/2$). Все это соответствует экспериментальной ситуации [2].

Кроме того, из (13), (14) следует, что при отклонении поля \mathbf{H} от кристаллографического направления эффект СП уменьшается, что также согласуется с экспериментом. Последнее обстоятельство связано с тем, что отклонение \mathbf{H} от направлений осей кристалла приводит к смешиванию спиновых состояний компаунда и существенному смягчению правил отбора для спин-релаксационных переходов между различными мультиплетами с $J=2$ и $J=3$. Это и приводит к уменьшению эффекта СП.

Отметим также, что исходные общие выражения для населенностей (11), вообще говоря, содержат температурную зависимость эффекта СП прежде всего из-за возможного различия температурных зависимостей $W_{\frac{3}{2}}^{(2)}(T)$ и $W_{\frac{3}{2}}^{(3)}(T)$. Действительно, в актуальном случае достаточно большого обменного взаимодействия может оказаться, что энергетическое расстояние от основного мультиплета с $J=3$ до ближайшего возбужденного состояния, участвующего в каскадном захвате (исключая, разумеется, мультиплет с $J=2$), превосходит предельную фононную частоту в кри-

сталле. Это приводит к доминированию здесь многофонных переходов, которые для захвата в мультиплет с $J=3$ могут играть роль узкого горла. При этом скорость многофонных переходов в этом узком горле в основном будет определяться фононами с частотами $\nu \gg kT/R$, что приводит к практически не зависящей от температуры скорости захвата. С другой стороны, скорость каскадного захвата на возбужденный мультиплет с $J=2$ обладает сильной температурной зависимостью, во многих случаях близкой к $W_3^{(2)} \sim \sim 1/T^{2.5}$. В результате температурная зависимость эффекта СП в условиях, когда $W_3^{(3)} \leq W_3^{(2)}$ (причем $W_3^{(3)} = C \simeq \text{const}$, $W_3^{(2)} \simeq B/T^{2.5}$, где C, B — константы), определяется отношением

$$[W_3^{(2)}/(W_3^{(2)} + W_3^{(3)})] \simeq B/(B + CT^{2.5}), \quad (15)$$

что дает, в частности, зависимость от температуры, близкую к $\sim 1/T$ (т. е. к той зависимости, которая характерна для спектров ЭПР в отсутствие СП).

4. Спиновая поляризация в условиях зависимости скорости захвата от проекций спина остова компаунд-состояния

Наконец, в некоторых случаях в условиях относительно слабого обменного рассеяния на заряженных парамагнитных центрах, в условиях каскадного захвата возможна ситуация, когда имеется зависимость от спина при захвате в состояния с различными проекциями полного спина одного и того же обменного мультиплета. Действительно, здесь спиновая память в процессе каскадного захвата сохраняется и в условиях действия не зависящих от спина взаимодействий, определяющих захват, правила отбора по спину диктуются видом спиновых частей волновых функций обменных мультиплетов коэффициентами $\alpha_{M',j}^{(3)}$, $\alpha_{M',i}^{(2)}$, для $J=3$, $J=2$ соответственно. Расчет эффекта СП в рамках исследуемого механизма, без потери общности вывода полученный для этого случая в пределе $W_3^{(2)} \gg W_3^{(3)}$, дает

$$n_M = \sum_{M'} n_{M'} P_{MM'}, \quad (16)$$

$$P_{MM'} = \sum_{ij} \left(|\alpha_{M',j}^{(3)}|^2 |\alpha_{M',i}^{(2)}|^2 \frac{(6/5) W_{\downarrow}^{(ij)}}{\sum_{j'} W_{\downarrow}^{(ij')}} \right).$$

В результате для разностей населенностей $(n_{3/2} - n_{3/2})$, $(n_{1/2} - n_{1/2})$ при $(G_{44})^2 \ll (G_{11} - G_{12})^2$ и $\vartheta=0$ мы приходим к $(n_{3/2} - n_{3/2}) = -(n_{3/2} - n_{1/2}) \simeq \simeq -0.118 n_{Cr+}$, что весьма близко к найденному выше результату (13), (14) на основе уравнений (6), (7). Это обстоятельство связано с тем, что определяющую роль при формировании СП здесь играет избирательная СРР между обменными мультиплеттами с различным полным спином в компаунд-состоянии.

В исследуемой модели в рамках ее нулевого приближения, когда спиновые состояния захватываемых электронов полагаются равновесными, обнаруженный в работе значительный эффект СП является следствием анизотропии спин-фононного взаимодействия и, как следствие, избирательной по спину релаксации в компаунд-состоянии. Здесь при выполнении соотношения между спин-фононными константами, которое соответствует сохранению сферической симметрии, эффект СП исчезает. Подобное свойство сохраняется, как следует из (16), и при необходимости учета зависимости захвата от проекций спина остова компаунд-состояния. Это обстоятельство подчеркивает важность учета реальной (кубической) симметрии спин-фононного взаимодействия, приводящего к СП.

Таким образом, рассматриваемая модель, в которой релаксационные процессы в компаунде существенно анизотропны и главным образом обусловлены спин-решеточным взаимодействием его остова с тетрагональными деформациями, может служить основой для интерпретации эксперимента.

Дальнейшее уточнение интерпретации эффекта спиновой поляризации может быть получено при учете спин-решеточного взаимодействия, связанного с модуляцией обменных взаимодействий в компаунде [3], спиновой поляризации свободного электрона, захватываемого на центр Cr^+ (в меру малости величины $g_c \beta H/kT$), а также эффекта СРР на зеемановских спиновых подуровнях (с сохранением J).

Список литературы

- [1] Watkins S. D. // Phys. Rev. 1984. V. 90. N 2. P. 802—812.
- [2] Кончиц А. А., Зарицкий И. М., Семенов Ю. Г., Шанина Б. Д., Вихнин В. С., Круликовский Б. К. // Письма в ЖЭТФ. 1980. Т. 31. № 1. С. 56—59.
- [3] Вихнин В. С. // Опт. и спектр. 1982. Т. 53. № 1. С. 185—189; Тез. докл. X совещ. по теории полупроводников, Новосибирск, 1980. Ч. 1 С. 107—108; Современные методы ЯМР и ЭПР в химии твердого тела. Черноголовка, 1982. С. 186—198.
- [4] Вихнин В. С. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 6. С. 1134—1142.
- [5] Вихнин В. С., Дейген М. Ф., Семенов Ю. Г., Шанина Б. Д. // ФТТ. 1976. Т. 18. № 8. С. 2222—2228.
- [6] Шанина Б. Д. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 1. С. 95—101; Изв. АН СССР, сер. физ. 1986. Т. 50. № 2. С. 243.
- [7] Кончиц А. А., Шанина Б. Д. // ФТТ. 1986. т. 28. № 2. С. 399—402.
- [8] Pedersen G. B., Freed J. H. // J. Chem. Phys. 1973. V. 58. N 7. P. 2869—2875.
- [9] Алтухов Г. Д., Пику, Г. Е., Рогачев А. А. // Письма в ЖЭТФ. 1977. Т. 25. № 3. С. 154—157.
- [10] Абакумов В. Н., Перель В. И., Ясиевич И. Н. // ФТП. 1978. Т. 12. № 1. С. 3—32.
- [11] Вихнин В. С. // УФЖ. 1979. Т. 24. № 12. С. 1802—1805.
- [12] Вихнин В. С., Зарицкий И. М., Кончиц А. А. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 5. С. 1336—1339.
- [13] Semenov Ju. G. // Phys. St. Sol. (b). 1987. V. 143. N 2. P. 717—726.
- [14] Кончиц А. А., Вихнин В. С., Зарицкий И. М., Круликовский Б. К. // ФТТ. 1978. Т. 20. № 8. С. 2338—2342.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе АН СССР
Ленинград

Поступило в Редакцию
15 августа 1989 г.
В окончательной редакции
5 января 1990 г.