

ВЛИЯНИЕ СЛУЧАЙНЫХ ПОЛЕЙ НА СПЕКТР ЭПР АКЦЕПТОРОВ Mn_{Ga} В p -GaAs

Аверкиев Н. С., Гуткин А. А., Красикова О. Г.,
Осипов Е. Б., Рециков М. А.

В рамках модели нейтрального акцептора Mn_{Ga} (Mn_{Ga}^{2+} + связанная дырка), учитывающей обменное взаимодействие дырки с пятью электронами $3d$ -оболочки Mn, рассмотрено влияние расщепления основного состояния (полный момент $F=1$) в случайных электрических или деформационных полях на спектр ЭПР. Вычислены форма, положение и интенсивность линий, соответствующих разрешенным ($\Delta m_F = \pm 1$) и запрещенным ($\Delta m_F = \pm 2$) переходам, при произвольных соотношениях расщеплений основного уровня в магнитном поле и хаотических полях. Показано, что экспериментальные спектры ЭПР, полученные на лучших образцах, согласуются с расчетными при g -факторе основного состояния ~ 2.77 и максимальном расщеплении этого состояния в случайных полях $10-30$ мкэВ. Указанные значения параметров согласуются с результатами других экспериментов.

Изучение акцепторного центра Mn_{Ga} в GaAs с уровнем на ~ 0.11 эВ выше v -зоны ведется уже на протяжении нескольких десятилетий (см., например, [1, 2]). Существенную роль в определении строения этого центра играют исследования связанного с ним ЭПР. Однако природа некоторых линий в спектрах ЭПР GaAs : Mn разными авторами интерпретировалась различным образом [1-3]. Лишь в последнее время были получены достаточно веские доказательства того, что линии с g -факторами ~ 2.75 и ~ 5.5 обусловлены нейтральным акцептором Mn_{Ga}^0 [4-6]. При этом подчеркивалось, что существование и вид этих линий в спектрах ЭПР в значительной мере определяются величиной случайных электрических полей или деформаций в кристалле. Ранее в работах [5, 7, 8] была предложена модель центра Mn_{Ga}^0 , в рамках которой объяснялись эксперименты по пьез- и магнитоспектроскопии и магнитной восприимчивости p -GaAs : Mn [9-12]. Эта модель рассматривала обменное взаимодействие сравнительно слабо локализованной дырки с пятью $3d$ -электронами остова Mn_{Ga} и принимала во внимание возможность существования в кристалле GaAs случайно ориентированных полей, расщепление уровней Mn_{Ga} в которых значительно меньше обменного. Величина g -фактора основного состояния Mn_{Ga}^0 в этой модели равна $g_1 \approx 2.75$ [5, 8]. Целью настоящей работы является детальное рассмотрение спектров ЭПР Mn_{Ga} в указанной модели.

Рассмотрим вначале ситуацию, когда случайные поля отсутствуют. Волновые функции основного состояния Mn_{Ga}^0 $|1, 1\rangle$, $|1, 0\rangle$ и $|1, -1\rangle$ соответствуют полному моменту системы (дырка + пять $3d$ -электронов) $F=1$ и приведены в [5, 8]. В магнитном поле H это состояние расщепляется на три подуровня с разными проекциями m_F полного момента на направление поля. Энергии этих подуровней равны

$$E_{m_F} = \mu_0 g_1 m_F H, \quad (1)$$

где μ_0 — магнетон Бора, $m_F = 0, \pm 1$. Перпендикулярное H переменное поле H_1 с частотой ω вызывает переходы между этими подуровнями с правилами отбора $\Delta m_F = \pm 1$, что, согласно (1), приводит к появлению одной линии в спектре ЭПР.

Сверхтонкое взаимодействие¹ со спином ядра Mn ($I=5/2$) приводит к расщеплению этой линии на шесть компонент. Переходы происходят в магнитном поле H , удовлетворяющем условию

$$\hbar\omega - \alpha m_I = \mu_0 g_I H, \quad (2)$$

где α — константа сверхтонкого взаимодействия, $m_I = \pm 1/2, \pm 3/2, \pm 5/2$. Заметим, что выражение (2) справедливо как для разрешенных, так и для запрещенных переходов, а также для переходов в центре $Mn\bar{G}_a$, но значения α и g -фактора для каждого типа переходов различны.

Случайные поля и деформации в кристалле меняют эту картину. Для простоты предположим, что на разные центры $Mn\bar{G}_a$ в магнитном поле действует

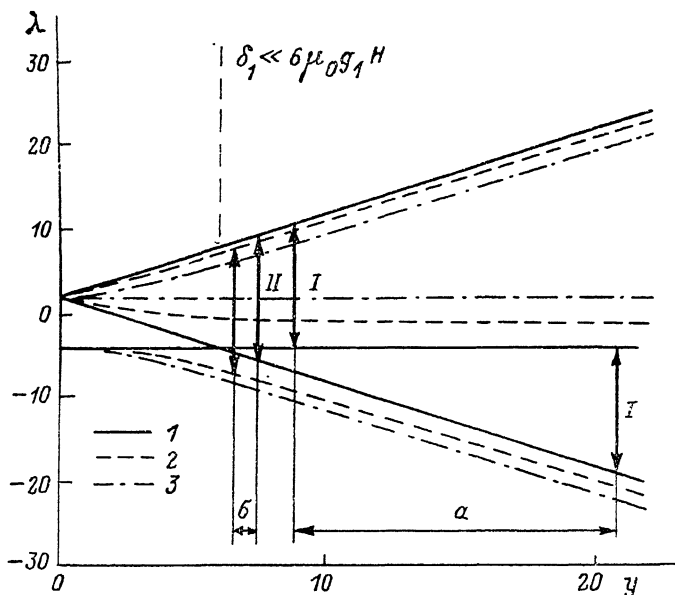


Рис. 1. Схема расщепления основного состояния системы $Mn\bar{G}_a$ при различных углах θ между направлениями магнитного и случайного полей.

θ , град: 1 — 0, 2 — 45, 3 — 90. I — разрешенные переходы ($\Delta m_F = \pm 1$), II — запрещенные переходы ($\Delta m_F = \pm 2$). α и β — области изменения y для разрешенных и запрещенных переходов соответственно.

случайно направленное поле одной и той же величины. Его влияние на спектр состояний в модели [5, 7, 8] описывается гамильтонианом

$$\mathcal{H}' = \frac{\delta}{2} \left(J_z^2 - \frac{5}{4} \right). \quad (3)$$

Здесь J_z' — оператор проекции момента дырки на ось случайного поля, а величина δ характеризует расщепление состояний дырки в отсутствие обменного взаимодействия. Поскольку предполагается, что обменное расщепление уровней акцептора $Mn\bar{G}_a$ значительно превышает δ , для вычисления воздействия случайного поля на основное состояние $F=1$ гамильтониан (3) можно заменить оператором [5, 8]

$$\mathcal{H}'' = \delta_1 \left(m_I^2 - \frac{2}{3} \right), \quad (3')$$

где $\delta_1 = (3/20)\delta$ и представляет собой расщепление основного состояния при $H=0$. Волновые функции состояний с $F=1$ в этом случае являются линейной комбинацией $|1, -1\rangle, |1, 0\rangle$ и $|1, 1\rangle$:

$$\Psi_i = C_{i,1} |1, 1\rangle + C_{i,0} |1, 0\rangle + C_{i,-1} |1, -1\rangle, \quad (4)$$

¹ Тонкое взаимодействие в кубическом кристалле не расщепляет линии, связанные с состоянием $F=1$.

где $C_{1,1}^i$, $C_{1,0}^i$ и $C_{1,-1}^i$ — коэффициенты, выписанные в [5, 8]. Энергия подуровней зависит не только от величин $\mu_0 g_1 H$ и δ_1 , но и от угла θ между направлениями H и случайного поля (рис. 1). Выражение для вероятности переходов из состояния i в состояние j с волновыми функциями, определяемыми (4), под влиянием радиочастотного электромагнитного поля в условиях экспериментов по ЭПР имеет вид

$$w_{i,j}(H) = \frac{\pi}{4\hbar} \sum_i \left| \frac{(\mu_0 g_1 H)^2}{y^2 \delta_1} [(3\lambda_j^2 - y^2 - 12)^{-1} - (3\lambda_i^2 - y^2 - 12)^{-1}]^{-1} \right| \times \\ \times [(C_{1,0}^j C_{1,1}^i + C_{1,-1}^j C_{1,0}^i)^2 + (C_{1,0}^j C_{1,-1}^i + C_{1,1}^j C_{1,0}^i)^2]. \quad (3)$$

Здесь (см. [5, 8]) λ_j и λ_i — корни характеристического уравнения, определяющего спектр состояния с $F=1$ в случайном и постоянном магнитном полях, $y = 6\mu_0 g_1 H / \delta_1$, $t = \cos \theta$. В сумму по t в (5) входят все члены, соответствующие значениям t , допускаемым законом сохранения энергии при переходе

$$\lambda_j(t) - \lambda_i(t) = 6\hbar\omega / \delta_1 = x. \quad (6)$$

Из (5) следует, что из-за смешивания состояний в случайном поле [см. (4)] величина $w_{i,j}$ отличается от нуля для любой пары из трех расщепившихся подуровней основного состояния (рис. 1). Это означает, что в присутствии случайного поля разрешены переходы как с $\Delta m_F = \pm 1$, так и с $\Delta m_F = \pm 2$.

Поскольку точные выражения для вероятностей и частот переходов сложны, проанализируем важный случай относительно малости хаотических полей $|y| \gg 1$.

Для разрешенных переходов из общего выражения для λ_i [5, 8] при $|y| \gg 1$ вытекает следующее условие резонанса:

$$y \pm 3(1 - 3t^2) = x, \quad (7)$$

где $t^2 \leq 1$. Это означает, что переходы идут для ряда y (т. е. H), соответствующих различным t . Диапазон допустимых значений H , полученный из (7) для каждой из линий сверхтонкого расщепления, составляет

$$\frac{\hbar\omega}{\mu_0 g_1} - \frac{am_I}{\mu_0 g_1} - \frac{\Delta_1 H}{2} \leq H \leq \frac{\hbar\omega}{\mu_0 g_1} - \frac{am_I}{\mu_0 g_1} + \frac{\Delta_1 H}{2}, \quad (8)$$

$$\Delta_1 H = 2|\delta_1| / (\mu_0 g_1).$$

Линии переходов с $\Delta m_F = \pm 2$ значительно уже, что обусловлено одинаковым (с точностью до членов порядка y^0) влиянием случайного поля на состояния с $m_F = 1$ и $m_F = -1$. Поэтому для определения диапазона магнитных полей, в которых будут наблюдаться переходы, необходимо вычислить λ_i с точностью до членов порядка y^{-1} . Это приводит к следующему условию резонанса:

$$2y + \frac{12 - 3(3t^2 - 1)^2}{y} = x. \quad (9)$$

Отсюда получим, что допустимые для переходов значения H для каждой из линий сверхтонкого расщепления лежат в интервале

$$\frac{\hbar\omega}{2\mu_0 g_1} - \frac{am_I}{2\mu_0 g_1} - \Delta_2 H \leq H \leq \frac{\hbar\omega}{2\mu_0 g_1} - \frac{am_I}{2\mu_0 g_1}, \quad (10)$$

$$\Delta_2 H = \delta_1^2 / (3\mu_0 g_1 \hbar\omega).$$

Для вычисления коэффициента поглощения (K) электромагнитного излучения с частотой ω в постоянном магнитном поле H воспользуемся соотношением

$$dK(H) = \frac{8\pi \sqrt{\varepsilon}}{cH^2} (j_i - j_j) w_{i,j} dN^0, \quad (11)$$

² Другие возможности применительно к объяснению результатов исследований магнитной восприимчивости ($|y| \ll 1$) и горячей фотолуминесценции в магнитном поле ($0 \leq |y| \leq \infty$) рассмотрены в [5, 8].

где dN^0 — концентрация центров Mn_{Ga}^0 , эквивалентных как в отношении направления случайного поля, так и в отношении других взаимодействий, дающих уширение линий ЭПР, dK — доля коэффициента поглощения, связанная с этими центрами, f_i — степень заселённости i -го подуровня основного состояния Mn_{Ga} . В условиях, когда обратное время релаксации заселённости уровней λ_{ij} больше w_{ij} , а $\alpha \ll \mu_0 g_1 H \ll kT$, $f_i - f_j = \hbar \omega / (18kT)$. Коэффициент $1/18$ связан с кратностью вырождения основного состояния ($F=1$), учитывающей сверхтонкое взаимодействие со спином ядра Mn ($I=5/2$).

Рассчитанные формы линий спектра ЭПР в случае $\delta_1 = \text{const}$ и $|y| \gg 1$ показаны на рис. 2. При этом предполагалось, что линии уширены только из-за хаотических полей. Тогда интегрирование по dN^0 при вычислении $K(H)$ с помощью (11) сводится к умножению на N^0 , где N^0 — полная концентрация цен-

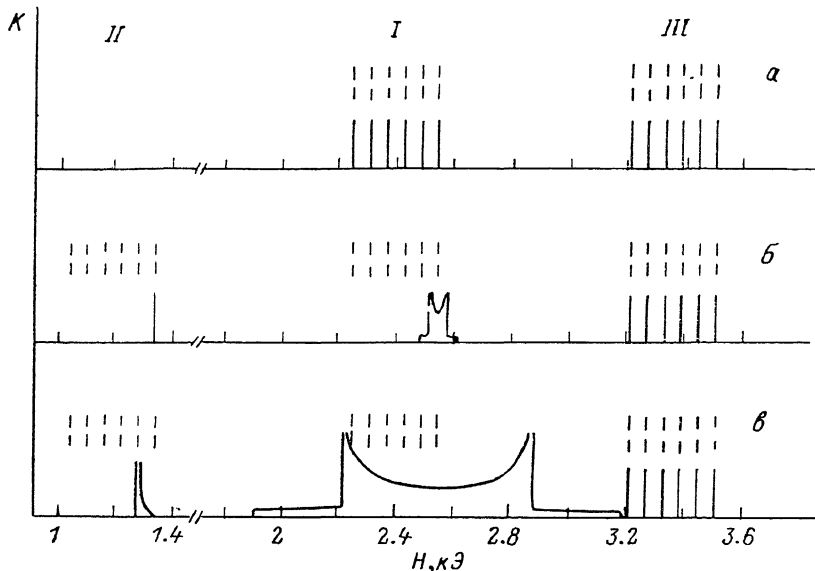


Рис. 2. Влияние расщепления в случайных полях на форму линий спектра ЭПР Mn_{Ga} .

Величина расщепления δ_1 для всех центров Mn_{Ga}^0 постоянна, $\hbar \omega = 39$ мкэВ. I — разрешенные переходы ($g_i = 2.77$), II — запрещенные переходы ($2g_i = 5.54$), III — переходы в Mn_{Ga} ($g_e = 2$). δ_1 , мкэВ: а — 0, б — 1, в — 10. На б, в показана форма только одной из линий сверхтонкой структуры, соответствующей $m_I = 5/2$.

тров Mn_{Ga}^0 . Как видно из рис. 2, пики полос разрешенных переходов расположены симметрично относительно $H = (\hbar \omega - am_I) / (\mu_0 g_1)$, в то время как пики полос запрещенных переходов смещены относительно $H = (\hbar \omega - am_I) / (2\mu_0 g_1)$ на величину $\Delta_2 H$. Последнее может являться причиной того, что наблюдаемый эффективный g -фактор этой полосы превышает $2g_1$ [4].

Оценим в приближении $|y| \gg 1$ коэффициенты поглощения в полосах, соответствующих различным типам переходов. Для этого уширения линии резонанса, не связанные со случайными полями, будем характеризовать феноменологическими величинами $\Delta H'$ и $\Delta H''$ для разрешенных и запрещенных переходов соответственно. Будем считать, что процессы, приводящие к подобным уширениям, незначительно смешивают состояния $|1, 1\rangle$, $|1, 0\rangle$ и $|1, -1\rangle$.

Если $\mu_0 g_1 \Delta H'$ и $\mu_0 g_1 \Delta H''$ значительно превышают δ_1 , то коэффициенты поглощения для разрешенных (K_1^0) и запрещенных (K_2^0) переходов равны

$$K_1^0 = \frac{4}{9} \frac{\pi^2 \sqrt{\varepsilon}}{\hbar c} \mu_0 g_1 \frac{(\hbar \omega)^2}{kT} \frac{N^0}{\Delta H'}, \quad (12)$$

$$K_2^0 = \frac{128}{135} \frac{\pi^2 \sqrt{\varepsilon}}{\hbar c} \mu_0 g_1 \frac{\delta_1^2}{kT} \frac{N^0}{\Delta H''}. \quad (13)$$

Из (13) следует, что при увеличении δ_1 от нуля интенсивность линий запрещенных переходов растет пропорционально δ_1^2 .

В обратной ситуации, когда определяющими являются уширения в случайных полях, форма линии резонанса искажается по сравнению с приведенной на рис. 2 в основном из-за отклонений δ_1 от средней величины $|\overline{\delta_1}|$. В этом случае можно считать, что ширина линий определяется формулами (8) и (10), где $|\delta_1|$ заменено на $|\overline{\delta_1}|$. Выражения для коэффициентов поглощения имеют вид

$$K_1^0 \approx \frac{2}{9} \frac{\pi^2 \sqrt{\varepsilon^-}}{\hbar c} (\mu_0 g_1)^2 \frac{(\hbar\omega)^2}{kT} \frac{N^0}{|\overline{\delta_1}|}, \quad (14)$$

$$K_2^0 \approx \frac{64}{27} \frac{\pi^2 \sqrt{\varepsilon^-}}{\hbar c} (\mu_0 g_1)^2 \frac{\hbar\omega}{kT} N^0. \quad (15)$$

(12)–(15), представляющие собой интенсивности отдельных компонент, расщепившихся из-за сверхтонкого взаимодействия,³ позволяют сопоставить между собой интенсивности линий для разрешенных и запрещенных переходов в Mn_{Ga}^0 . Для сравнения приведем также выражение для коэффициента поглощения в линиях ЭПР отрицательно заряженного центра Mn_{Ga}^-

$$K^- \approx \frac{35}{9} \frac{\pi^2 \sqrt{\varepsilon^-}}{\hbar c} \mu_0 g_e \frac{(\hbar\omega)^2}{kT} \frac{N^-}{\Delta H}. \quad (16)$$

Здесь g_e — g -фактор $3d$ -электронов, N^- — концентрация Mn_{Ga}^- , ΔH — эмпирическая ширина линии спектра ЭПР. Оценки на основании (12)–(16) показывают, что при $\hbar\omega \approx 40$ мкэВ интенсивности всех линий сравнимы, если $|\delta_1| \approx 20$ мкэВ и $N^- \approx 0.1N^0$.

Спектры ЭПР Mn_{Ga}^0 в GaAs, вычисленные с использованием точных выражений (5), (6), (11) при $g_1 = 2.77$ [4], приведены на рис. 3. При этом предполагалось, что величины расщеплений в случайных полях δ_1 равномерно распределены от нуля до $\delta_{1 \text{ max}}$. Такое распределение по крайней мере для некоторых из кристаллов p -GaAs : Mn подтверждается исследованиями поглощения ультразвука [13]. Исходное уширение линий сверхтонкой структуры подбиралось таким образом, чтобы для переходов в центре Mn_{Ga}^0 (т. е. в $3d$ -оболочке), на которые не действуют случайные поля, получить осцилляции зависимости $\partial K / \partial H = f(H)$, близкие к экспериментальным. Как видно из рис. 3, экспериментальные результаты [4] хорошо описываются расчетом при $\delta_{1 \text{ max}} = 18$ мкэВ.

Если в кристаллах реализуется некоторое предпочтительное значение расщепления случайным полем δ_{10} , например, в силу заметного эффекта Яна—Теллера, то спектр ЭПР будет подобен представленному на рис. 2 даже при наличии флуктуаций δ_1 относительно δ_{10} . Это приведет к отличию зависимости $\partial K / \partial H = f(H)$ от показанной на рис. 3.

Отметим, что из-за сдвига линии запрещенных переходов на $\Delta_2 H$ величина эффективного g -фактора g^* этих переходов равна

$$g^* \approx 2g_1 \left(1 + \frac{\Delta_2 H}{H_2} \right), \quad (17)$$

где H_2 — положение пика линии запрещенных переходов. Для $|\overline{\delta_1}| = 9$ мкэВ, $H_2 \approx 1.2$ кЭ и $g_1 = 2.77$ $g^* \approx 5.7$, что находится в хорошем согласии с экспериментом [4]. Укажем также, что существование тех же самых случайных полей или

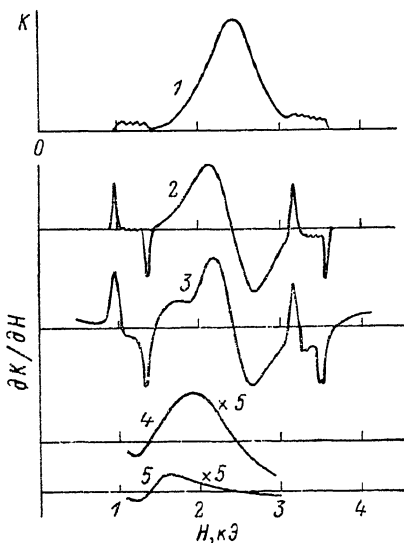


Рис. 3. Сопоставление расчетных спектров ЭПР с экспериментальными.

1, 2, 4, 5 — расчет, 3 — эксперимент [4].
 $N^-/N^0 = 0.02$; $g_1 = 2.77$, $g_e = 2$. $\delta_{1 \text{ max}}$, мкэВ:
 1, 2 — 18, 4 — 72, 5 — 180.

³ Если уширение каждой линии превышает сверхтонкое расщепление, для вычисления K_1^0 и K_2^0 правую часть выражений (12)–(15) надо умножить на 6.

деформаций вызывает расщепление уровней мелкого акцептора на величину $(20/3) \delta_1$.

Отсутствие сигнала ЭПР от Mn_{Ga}^0 в образцах, исследовавшихся в работах [3, 11], как следует из расчетов, представленных на рис. 3 (кривые 4, 5), можно связать с существованием в них больших расщеплений в хаотических полях. В рассматриваемой модели однородного распределения расщеплений это соответствует $\delta_{1 \max} \geq 0.2$ мэВ (рис. 3, кривая 5).

Таким образом, можно заключить, что результаты исследований ЭПР в p -GaAs : Mn хорошо объясняются в модели [5, 7, 8].

Л и т е р а т у р а

- [1] Мастеров В. Ф. // ФТП. 1984. Т. 18. В. 1. С. 3—23.
- [2] Clerjaud B. // J. Phys. C. 1985. V. 18. N 19. P. 3615—3661.
- [3] Андрианов Д. Г., Григорьев Ю. А., Климонский С. О., Савельев А. С., Якубея С. М. // ФТП. 1984. Т. 18. В. 2. С. 262—265.
- [4] Schneider J., Kaufmann U., Wikenning W., Baumler M., Kohl F. // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 59. N 2. P. 240—243.
- [5] Аверкиев Н. С., Гуткин А. А., Осипов Е. Б., Решиков М. А. // ФТТ. 1988. Т. 30. В. 3. С. 765—774.
- [6] Мастеров В. Ф., Штельмах К. Д., Барбашев М. Н. // ФТП. 1988. Т. 22. В. 4. С. 654—656.
- [7] Аверкиев Н. С., Гуткин А. А., Осипов Е. Б., Решиков М. А. // ФТП. 1987. Т. 21. В. 10. С. 1847—1853.
- [8] Аверкиев Н. С., Гуткин А. А., Осипов Е. Б., Решиков М. А. // Препринт ФТИ им. А. Ф. Иоффе АН СССР. Л., 1988. № 1201.
- [9] Schairer W., Schmidt M. // Phys. Rev. B. 1974. V. 10. N 6. P. 2501—2506.
- [10] Аверкиев Н. С., Гуткин А. А., Колчанова Н. М., Решиков М. А. // ФТП. 1984. Т. 18. В. 9. С. 1629—1633.
- [11] Карлик И. Я., Меркулов И. А., Мирлин Д. Н., Никитин Л. Н., Перель В. И., Сапега В. Ф. // ФТТ. 1982. Т. 24. В. 12. С. 3550—3557.
- [12] Андрианов Д. Г., Большева Ю. Н., Лазарева Г. В., Савельев А. С., Якубея С. М. // ФТП. 1983. Т. 17. В. 5. С. 810—813.
- [13] Lassmann K., Schad H. // Sol. St. Commun. 1976. V. 18. N 4. P. 449—452.

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

Получена 23.05.1988
Принята к печати 26.07.1988