

# Сверхтонкое взаимодействие и рекомбинация Шокли–Рида–Холла в полупроводниках

© Е.Л. Ивченко<sup>1</sup>, В.К. Калевич<sup>1</sup>, А. Kunold<sup>2</sup>, А. Balocchi<sup>3</sup>, Х. Marie<sup>3</sup>, Т. Amand<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Universidad Autónoma Metropolitana Azcapotzalco, 02200 Mexico City, Mexico

<sup>3</sup> Université de Toulouse, INSA-CNRS-UPS, 31077 Toulouse, France

E-mail: ivchenko@coherent.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 24 апреля 2019 г.

В окончательной редакции 29 апреля 2019 г.

Принята к публикации 29 апреля 2019 г.

Дается обзор экспериментальных и теоретических исследований оптической ориентации и спин-зависимой рекомбинации в полупроводнике в магнитном поле при нормальном падении на поверхность образца циркулярно поляризованного излучения. Эксперименты выполнены на твердых растворах  $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ , в которых глубокими парамагнитными центрами, ответственными за спин-зависимую рекомбинацию, являются межузельные дефекты смещения  $\text{Ga}^{2+}$ . Установлено, что в исследованных материалах сверхтонкое взаимодействие локализованного электрона с (одним) ядром парамагнитного центра остается сильным даже при комнатной температуре. Проводится сравнение теории с экспериментом, выполненным как при стационарном режиме возбуждения, так и в условиях двухимпульсного метода „накачка–зондирование“. Выведена аналитическая формула для спиновых биений в магнитном поле.

**Ключевые слова:** оптическая ориентация, рекомбинация, глубокие центры, сверхтонкое взаимодействие, спиновые биения.

DOI: 10.21883/FTP.2019.09.48124.07

## 1. Введение

Начало исследованиям оптической ориентации электронных спинов в условиях спин-зависимой рекомбинации в полупроводниках было положено в работе „отца“ полупроводниковой спинтроники Жоржа Лампеля [1] (см. также [2,3]). Новый этап развития этой области физики полупроводников начался с обнаружения и описания спин-зависимой рекомбинации оптически ориентированных электронов в твердом растворе  $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$  при комнатной температуре [4–7]. В этом материале роль глубокого центра безызлучательной рекомбинации играет межузельный атом галлия [8]. Следующий прорыв произошел, когда было установлено, что в кинетике спин-зависимой рекомбинации важную роль играет сверхтонкое взаимодействие электрона, связанного на глубоком центре, с ядром этого центра [8–12]. В 2015–2018 гг. мы построили теорию спин-зависимой рекомбинации Шокли–Рида–Холла с учетом сверхтонкого электрон-ядерного взаимодействия, описали имеющиеся экспериментальные данные и предсказали временные биения электронных спинов на глубоких парамагнитных центрах, обусловленные сверхтонким взаимодействием [13].

В настоящей статье представлен обзор исследований, посвященных сверхтонкому взаимодействию при рекомбинации фотоносителей через глубокие центры в эпитаксиальных слоях  $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$  и структурах с квантовыми ямами, выращенных на основе такого твердого рас-

твора, а также приведены оригинальные теоретические результаты по электрон-ядерным спиновым биениям в магнитном поле.

## 2. Экспериментальные свидетельства сверхтонкого взаимодействия

Спиновая зависимость рекомбинации свободных фотоносителей через глубокие центры в полупроводниках возникает в том случае, если в равновесии на центре находится один электрон (парамагнитный центр) и второй электрон может захватиться, если его спин антипараллелен спину первого электрона. В условиях оптической накачки, т.е. при освещении полупроводникового кристалла циркулярно поляризованным светом, парамагнитные центры динамически поляризуются по спину и действуют как спиновый фильтр, увеличивая спиновую поляризацию, а также концентрацию свободных электронов. В эксперименте эффект спинового фильтра проявляется: а) в росте степени циркулярной поляризации  $\rho$  фотолюминесценции (ФЛ) с увеличением интенсивности накачки и б) в повышении интенсивности ФЛ  $J$  при переходе от линейной поляризации оптической накачки, когда спиновый фильтр выключен, к циркулярной поляризации. При сильной стационарной накачке спиновая поляризация центров и свободных электронов может быть почти полной, а коэффициент

спин-зависимой рекомбинации  $K_{SDR} = J_{circ}/J_{lin}$  может на порядок превышать единицу.

Сверхтонкая связь между электронным и ядерным спинами продемонстрирована прямым наблюдением оптически детектируемого магнитного резонанса на одно-электронных состояниях глубокого центра  $Ga^{2+}$  [8,9].

Экспериментальные свидетельства электрон-ядерного сверхтонкого взаимодействия при спин-зависимой рекомбинации были также представлены в работах [10–12] по изучению оптической ориентации электронов в  $GaAs_{1-x}N_x$  в продольном магнитном поле. Во-первых, это существенный рост в продольном магнитном поле  $B_z$  интенсивности  $J$  и степени круговой поляризации  $\rho$  ФЛ, возбуждаемой циркулярно поляризованным светом (рис. 1, *a* и *b*). Магнитное поле понижает электрон-ядерную связь, спин локализованного электрона в меньшей степени передается ядрам, и эффект спинового фильтра возрастает, а значит, растут  $J$  и  $\rho$ . При линейно поляризованном возбуждении интенсивность не зависит

от поля  $B_z$ , а люминесценция в области использованных значений поля не поляризована.

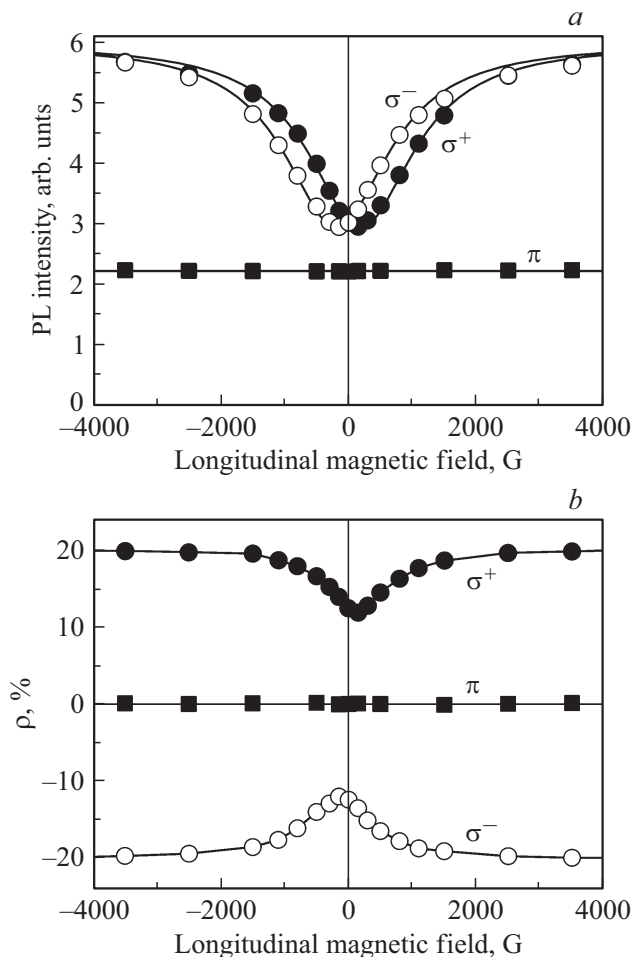
Второй эффект магнитного поля более тонкий и его наблюдение требует больших усилий, он однозначно свидетельствует о влиянии ядер: минимумы экспериментальных зависимостей  $J(B_z)$  и  $\rho(B_z)$  смещены относительно нуля поля на совпадающие величины  $\pm B_{eff}^{(J)}$  и  $\pm B_{eff}^{(\rho)}$ , где знаки  $\pm$  определяются направлением круговой поляризации света. Сдвиги обусловлены полем действующего на электрон поляризованного ядра (полем Оверхаузера  $B_{eff}$ ). На рис. 2, *a* и *c* приведены измеренные (кружки) и рассчитанные (сплошные кривые) зависимости от интенсивности накачки  $W$  полей Оверхаузера, полученных из кривых  $J(W)$  и  $\rho(W)$ . На том же рисунке, панели *b* и *d*, построены зависимости от  $W$  отношений

$$\xi = \frac{\rho(\infty)}{\rho_{min}}, \quad \zeta = \frac{J(\infty)}{J_{min}}, \quad (1)$$

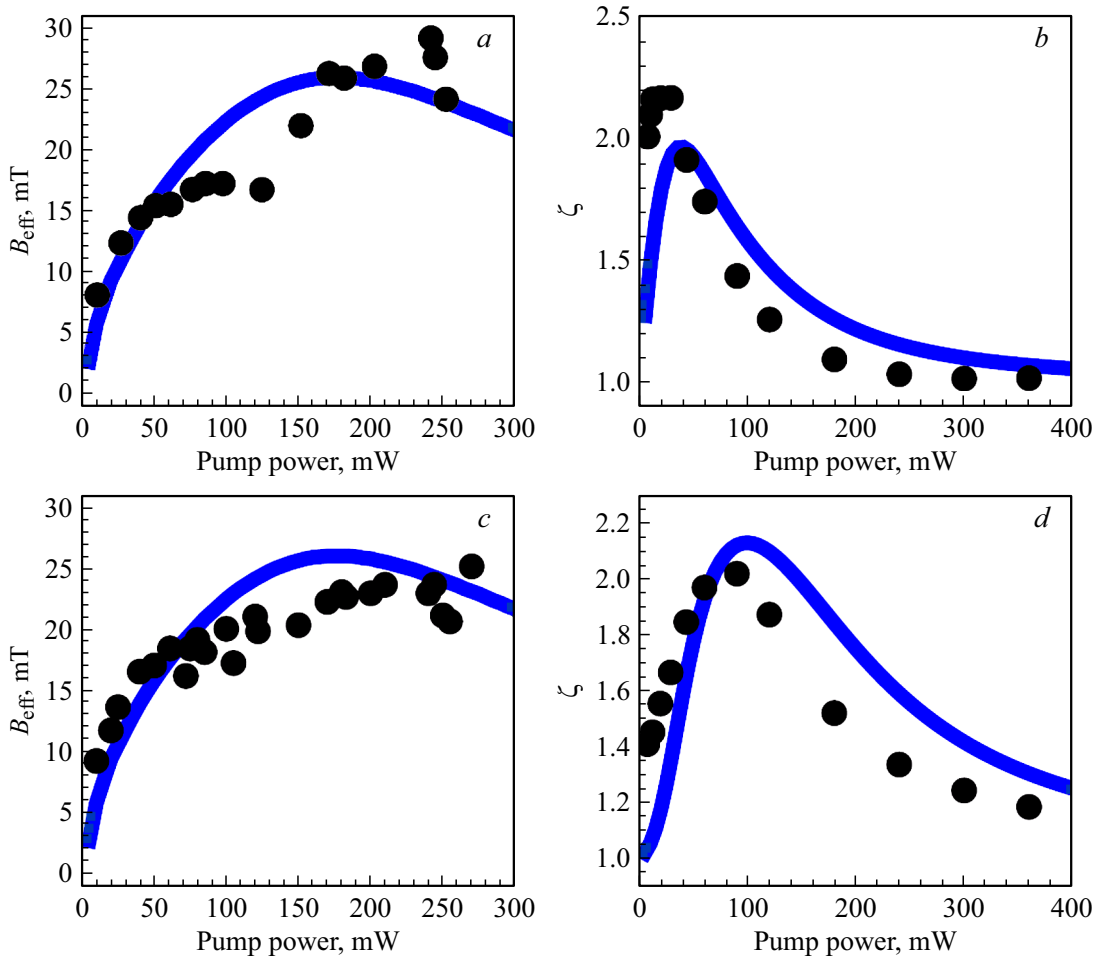
поляризации и интенсивности ФЛ в сильном магнитном поле и в поле  $B = B_{eff}$ .

### 3. Кинетическая теория спин-зависимой рекомбинации

Теория сверхтонкого взаимодействия при спин-зависимой рекомбинации [12–16] построена в рамках двухзарядной модели безызлучательной рекомбинации через глубокие примесные центры. Каждый из центров может находиться в одном из двух состояний: в равновесии в состоянии  $D_1$  с одним электроном (парамагнитное состояние), а при освещении также в состоянии  $D_2$  с двумя электронами (синглет). Сумма  $N_1 + N_2$  концентраций глубоких центров в этих состояниях равна их полной концентрации  $N_c$ . Учитываются процессы захвата фотоэлектронов из зоны проводимости на парамагнитные центры  $D_1$  (коэффициент захвата  $c_n$ ) и фотодырок из валентной зоны на центры с двумя электронами  $D_2$  (коэффициент захвата  $c_p$ ). Предполагается, что в равновесии свободные носители отсутствуют; в этом случае концентрации свободных электронов  $n$  и свободных дырок  $p$  удовлетворяют условию  $p = n + N_2$ . Из-за быстрой спиновой релаксации дырки не поляризованы, и их концентрация удовлетворяет уравнению баланса  $c_p p N_2 = G^{opt}$ , не зависящему от спина. Здесь  $G^{opt}$  — скорость межзонной оптической генерации электронно-дырочных пар. В настоящем разделе рассматриваются условия стационарного оптического возбуждения. Для краткости мы не будем выписывать здесь уравнения кинетики для концентрации  $n$  и спиновой поляризации  $S$  фотоэлектронов в зоне проводимости. Заметим только, что в эти уравнения можно не включать малые слагаемые, пропорциональные произведениям  $n\rho$  и  $S\rho$  и отвечающие за бимолекулярную излучательную рекомбинацию. В то же время измеряемые в эксперименте интенсивность  $J$  и степень



**Рис. 1.** Интенсивность ФЛ (*a*) и степень циркулярной поляризации ФЛ (*b*) в зависимости от продольного магнитного поля, измеренные при комнатной температуре в  $GaAs_{0.979}N_{0.021}$  при возбуждении светом, поляризованным линейно ( $\pi$ ) и циркулярно по правому ( $\sigma^+$ ) или левому ( $\sigma^-$ ) кругу, с интенсивностью 75 мВт [10].



**Рис. 2.** Эффективные магнитные поля Оверхаузера  $B_{\text{eff}}^{(\rho)}$  (a) и  $B_{\text{eff}}^{(J)}$  (c), отношения  $\xi$  (b) и  $\zeta$  (d), определенные согласно (1), в зависимости от интенсивности накачки  $W$ . Сплошные кружки — экспериментальные данные [10,11], кривые рассчитаны для магнитодипольного механизма ядерной спиновой релаксации [13].

циркулярной поляризации  $\rho$  ФЛ связаны именно с этими вкладами [16]:

$$J = \gamma n p, \quad \rho = \frac{2P'S_z}{n}, \quad (2)$$

где  $P'$  — коэффициент деполяризации [7].

Ключевым является уравнение для поляризации локализованных электронов  $S_c$

$$c_n (nS_c - N_1S) + \frac{S_c}{\tau_{sc}} + S_c \cdot \beta + R_{hf} = 0. \quad (3)$$

Здесь  $\tau_{sc}$ ,  $\beta = g_c \mu_B \mathbf{B} / \hbar$  и  $g_c$  — время спиновой релаксации, частота ларморовой прецессии и  $g$ -фактор локализованных электронов. Последнее слагаемое в левой части уравнения (3) описывает электрон-ядерную связь

$$R_{hf} = \frac{i}{\hbar} \text{Tr} \left\{ s^e \left[ \mathcal{H}_{hf}, \hat{\rho}^{(1)} \right] \right\}, \quad (4)$$

где  $\mathcal{H}_{hf}$  — оператор сверхтонкого взаимодействия  $A(s^e \cdot \mathbf{I})$ ,  $s^e$  и  $\mathbf{I}$  — операторы электронного и ядерного спинов,  $\hat{\rho}^{(1)}$  — спиновая матрица плотности парамагнитного центра с одним электроном, она содержит  $4(2I + 1)^2$  компонент  $\rho_{s'm',sm}^{(1)}$ ,  $I$  — спин ядра;

$s', s = \pm 1/2$  и  $m', m = -I, \dots, I$  — проекции электронного и ядерного спинов на ось  $z$ . Электронная поляризация  $S_c$  выражается через компоненты  $\rho_{s'm',sm}^{(1)}$  просуммированные по ядерному индексу  $m$ , в виде

$$S_c = \text{Tr} \{ s^e \hat{\rho}^{(1)} \} = \sum_{s'm} s_{ss'}^e \rho_{s'm,sm}^{(1)}.$$

Слагаемое  $R_{hf}$  связывает  $S_c$  с другими компонентами матрицы плотности  $\rho_{s'm',sm}^{(1)}$ . В кинетические уравнения для этих других компонент входит связь с электронной поляризацией  $S_c$  и ядерной спиновой матрицей плотности  $\hat{\rho}^{(2)}$  центра с двумя электронами (матрица размерности  $I \times I$ ).

Ядро межузельного дефекта  $\text{Ga}^{2+}$  имеет спин  $I = 3/2$ . В этом случае число уравнений для  $N_1, N_2, n, p, S, \rho_{s'm',sm}^{(1)}$  и  $\rho_{m',m}^{(2)}$  оказывается очень большим и эту систему уравнений приходится решать численными методами. В геометрии Фарадея,  $\mathbf{B} \parallel z$ , отличны от нуля компоненты  $\rho_{s'm',sm}^{(1)}$  с совпадающей суммарной проекцией углового момента:  $s + m = s' + m' \equiv M$ , что уменьшает

число решаемых уравнений. Ситуация еще более упрощается для модельной задачи с  $I = 1/2$ , в которой число искоемых величин уменьшается до 11, а именно  $n, p, N_2, N_1, S = S_z, S_c = S_{cz}$ , ядерные поляризации  $S_{n1} = S_{n1,z}, S_{n2} = S_{n2,z}$  и три линейно независимые комбинации компонент  $\rho_{s'm',sm}^{(1)}$ , описывающих корреляцию электронного и ядерного спинов и обозначенных в [16] в виде  $\Phi_{xx}, \Phi_{zz}$  и  $\Phi_{xy}$ .

Перечислим предсказания модели спин-зависимой рекомбинации с  $I = 1/2$ . а) В отсутствие спиновой релаксации ядер сверхтонкое взаимодействие в спин-зависимой рекомбинации не проявляется. б) При очень быстрой спиновой релаксации ядер связь их спина с электронным спином выключается, и влияние ядер на спин локализованных электронов исчезает. в) Спиновые поляризации  $S, S_c$  растут монотонно с увеличением магнитного поля. В сильном поле  $B \gg A/(g_c \mu_B)$  электрон-ядерная связь разрывается и сверхтонким взаимодействием можно пренебречь. г) В отсутствие магнитного поля ядерная спиновая поляризация  $S_{n1}$  или  $S_{n2}$  монотонно зависит от скорости генерации электронно-дырочных пар  $G^{\text{opt}}$  при циркулярной поляризации возбуждения и при некотором значении  $G^{\text{opt}}$  достигает максимума. д) Спиновые поляризации свободных и локализованных электронов, спиновая поляризация ядер и измеряемые на опыте интенсивность  $J$  и степень циркулярной поляризации  $\rho$  ФЛ являются четными функциями магнитного поля  $B_z$ .

Как следует из рис. 1, последнее утверждение находится в противоречии с асимметрией экспериментальных зависимостей  $J(B_z)$  и  $\rho(B_z)$ . Такая асимметрия появляется для ядерного момента  $I > 1/2$ , в частности для  $I = 3/2$  [13–16]. В теоретической модели с  $I = 3/2$  нужно было определиться с описанием ядерной спиновой релаксации. В отличие от модели с  $I = 1/2$ , в которой спиновая релаксация означает переход из состояния со спином  $m = 1/2$  безальтернативно в состояние  $m' = -1/2$  и, соответственно, из состояния  $m = -1/2$  в состояние  $m' = 1/2$ , при  $I = 3/2$  спиновая релаксация, например, из состояния  $m = 3/2$  может сопровождаться переходами в три различных состояния  $m' = 1/2, -1/2$  и  $-3/2$ . В работе [15] использовалась простейшая модель неселективной ядерной релаксации. Расчет показывает, что при таком выборе релаксационных членов для компонент матриц плотности  $\hat{\rho}^{(1)}$  и  $\hat{\rho}^{(2)}$  асимметрия в зависимостях  $J(B_z)$  и  $\rho(B_z)$  не возникает, т.е. обязательно требуется привлечь селективный механизм ядерной спиновой релаксации. В работе [13] учтены два селективных механизма релаксации ядерного спина, основанных на методе случайных сил: магнитодипольный и электроквадрупольный. На рис. 2 сплошными кривыми представлен результат расчета для магнито-дипольного механизма ядерной релаксации, который лучше согласуется с экспериментальными данными.

На рис. 2а и с показано удовлетворительное согласие между теорией и экспериментом в области интенсивностей накачки до 300 мВт. Однако при дальнейшем росте

интенсивности согласие нарушается: рассчитанные сдвиги  $B_{\text{eff}}^{(\rho)}$  и  $B_{\text{eff}}^{(J)}$  убывают, тогда как экспериментальные сдвиги убывания не демонстрируют. Возможно, расхождение при большой интенсивности накачки связано с тем, что в уравнении (3), помимо слагаемого  $\mathbf{R}_{hf}$ , описывающего сверхтонкое взаимодействие, не учтены индуцированные акустическими фононами процессы взаимного переворота электронных и ядерных спинов (флип–флоп переходы) (см. [12]). Выяснение этого вопроса может стать темой дальнейшего изучения спин-зависимой рекомбинации.

Следует отметить, что еще в 1972 г. Дьяконовым и Перелем было рассмотрено сверхтонкое взаимодействие оптически ориентированных электронов, захваченных на примесные центры, с собственными ядрами центров [17]. Эта работа послужила основой для развития излагаемой здесь теории спин-зависимой рекомбинации оптически ориентированных фотоэлектронов. Главное сходство заключается в том, что обе теории применимы, когда локализованный электрон взаимодействует только с одним ядром. Более того, в статье [17] отмечено, что электронная спиновая ориентация не зависит от знака продольного магнитного поля  $B_z$  для ядер с моментами  $I = 1/2$ , а также при  $I > 1/2$  в случае неселективной ядерной релаксации, когда заселенности всех ядерных подуровней релаксируют одинаково. Однако расчета асимметричной зависимости электронной спиновой поляризации  $S(B_z)$  в работе [17] не проводилось. Главное отличие нашей теории лежит в учете спин-зависимой рекомбинации и эффекта спинового фильтра.

В разработанной теории [13–16] предполагалось, что в равновесии на дефекте сидит один связанный электрон, а при межзонном оптическом возбуждении на него может захватиться второй электрон с образованием двухэлектронного синглетного состояния. В работе [18] была поставлена цель — выяснить, как наличие глубоких центров, отличных от межзональных дефектов  $\text{Ga}^{2+}$ , повлияет на эффективность „спинового фильтра“. Была рассмотрена возможность наличия в образце дополнительно дефектов  $\text{Ga}^{3+}$ , каждый из которых может находиться в одном из трех состояний: в равновесии — без электрона, а при освещении — с одним электроном (парамагнитное состояние) и двумя электронами (синглетное двухэлектронное состояние). На такую возможность было указано в 2010 г. в статье [7] еще до начала изучения роли сверхтонкого взаимодействия. В [18] выведена нелинейная система связанных уравнений кинетики для шести спиновых матриц плотности в системе: свободные электроны в зоне проводимости (4 компоненты у матрицы размерности  $2 \times 2$ ), электрон-ядерная подсистема для дефекта  $\text{Ga}^{2+}$  или  $\text{Ga}^{3+}$  с одним электроном на глубоком центре (по 64 компоненты), ядро дефекта  $\text{Ga}^{2+}$  с двумя связанными электронами или ядро дефекта  $\text{Ga}^{3+}$  без электрона и с двумя связанными электронами (по 16 компонент), а также для плотности фотодырок и плотности дефектов  $\text{Ga}^{3+}$  без электрона. Установлено, что добавление небольшого количества  $\text{Ga}^{3+}$  (2%) улучшает согласие теории и эксперимента.

#### 4. Электрон-ядерные спиновые биения

В работе [13] были предсказаны временные биения электронного спина на глубоком парамагнитном центре, обусловленные сверхтонким взаимодействием электрона с ядром центра (межузельный атом галлия в твердом растворе  $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ ). Частота биений определяется энергетическим расщеплением электрон-ядерной спин-спиновой системы на уровни с полным моментом  $J = 1$  и  $J = 2$  (спин электрона  $1/2$ , спин ядра  $3/2$ ). Для экспериментального обнаружения этого явления потребовалась оригинальная теоретическая проработка постановки опыта „накачка–зондирование“, которая состоит в следующем. 1) Короткий импульс циркулярно (circ) [или линейно (lin)] поляризованной накачки рождает поляризованные (или неполяризованные) по спину фотоэлектроны в зоне проводимости и фотодырки в валентной зоне; дырки быстро теряют направленный спин и их можно считать неполяризованными. 2) В равновесии на каждом глубоком центре сидит по одному электрону. Фотоэлектроны, рожденные в зоне проводимости, быстро захватываются на глубокие центры с образованием двухэлектронных синглетных состояний. Если фотоэлектроны поляризованы по спину, то одноэлектронные состояния оказываются спин-поляризованными. 3) Зондирующий импульс, поляризованный циркулярно, приходит с временной задержкой  $\Delta t$  относительно импульса накачки. 4) Измеряется проинтегрированная по времени интенсивность  $J_{\text{int}}(\Delta t)$  межзонной ФЛ, инициируемой зондирующим импульсом. 5) Наконец, находится зависимость от задержки  $\Delta t$  динамического сигнала спин-зависимой рекомбинации, определяемого как отношение

$$R(\Delta t) = \frac{J_{\text{int}}(\text{pump:circ, probe:circ; } \Delta t)}{J_{\text{int}}(\text{pump:lin, probe:circ; } \Delta t)}. \quad (5)$$

Чтобы пояснить природу спиновых биений в отсутствие магнитного поля, рассмотрим эволюцию матрицы плотности одноэлектронного центра с начальным условием

$$\rho_{s',m';s,m}(0) = \rho_{1/2,m;1/2,m} \delta_{s',1/2} \delta_{s,m}. \quad (6)$$

Это условие отвечает спин-поляризованному электрону с  $s = 1/2$  и неполяризованным ядром. Далее следует перейти к базису электрон-ядерных собственных состояний  $|J, M\rangle$  ( $J = 1, 2; M = -J, \dots, J$ ). При этом матрица  $\rho_{J',M';J,M}(t=0)$  диагональна по проекции углового момента  $M$ , а по индексу  $J = I \pm 1/2$  у этой матрицы отличны от нуля как диагональные, так и недиагональные компоненты. С течением времени  $t$  диагональные компоненты не меняются (спиновой релаксацией для простоты пренебрегаем), а недиагональные компоненты осциллируют с частотой сверхтонкого расщепления  $\Omega$ . Возвращаясь обратно к базису  $|s, m\rangle$ , находим временную эволюцию матрицы  $\rho_{s',m';s,m}(t)$ . Число одноэлектронных центров  $N_{\pm}^{(1)}(t)$  с проекцией спина электрона

$s = \pm 1/2$  определяется суммой  $\sum_m \rho_{s,m;s,m}(t)$ . С задержкой  $\Delta t$  приходит циркулярно поляризованный пробный импульс, возбуждающий фотоносители. При быстром захвате фотоэлектронов их концентрации  $n_{\pm}$  со спином  $s = \pm 1/2$  убывают экспоненциально

$$n_{\pm}(t) = n_{\pm}(0) e^{-2c_n N_{\mp}^{(1)}(\Delta t)t},$$

где время  $t$  отсчитывается от  $\Delta t$ . Учитывая медленный захват дырок на двухэлектронные центры и небольшое изменение  $N_{\pm}^{(1)}(\Delta t)$  относительно равновесного значения  $N_c/2$ , получаем для интенсивности фотолуминесценции (2), проинтегрированной по  $t$ ,

$$J_{\text{int}}(\Delta t) = \int_0^{\infty} J(t; \Delta t) dt \propto n_+(0) + n_-(0) + [n_+(0) - n_-(0)] \frac{N_+^{(1)}(\Delta t) - N_-^{(1)}(\Delta t)}{N_c}. \quad (7)$$

Отсюда следует, что сигнал спин-зависимой рекомбинации (5) описывается формулой

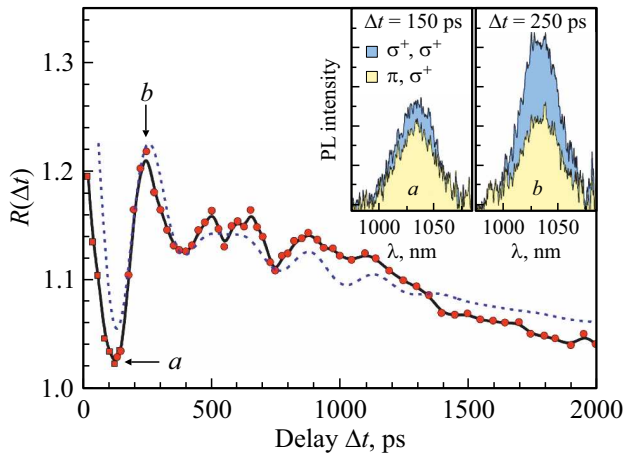
$$R(\Delta t) = 1 + \frac{2P_i S_{cs}(\Delta t)}{N_c}, \quad (8)$$

где  $P_i$  — начальная степень поляризации фотоэлектронов и  $S_{cs} = (N_+^{(1)} - N_-^{(1)})/2$ . Заметим, что обычно применяемый одноцветный метод накачка – зондирование с использованием циркулярно поляризованного импульса накачки и линейно поляризованного пробного импульса [19] для рассматриваемой системы неэффективен: к моменту прихода пробного импульса фотоэлектронов в зоне проводимости не остается, они уже связаны на глубоких центрах, а спиновая поляризация одноэлектронных центров  $S_{cz}$  не оказывает заметного влияния на поляризацию пробного луча. В то же время изложенные выше процедуры 1)–5) позволяют проследить согласно (8), за поведением  $S_{cz}$  во времени.

С учетом спиновой релаксации и наличия двух изотопов галлия получаем вместо (8)

$$R(\Delta t) = 1 + C_d e^{-\Delta t/\tau_{sc}} + C_{nd} F(\Delta t) [f_1 \cos(\Omega_1 \Delta t) + f_2 \cos(\Omega_2 \Delta t)], \quad (9)$$

где  $\hbar\Omega_j$  — величина сверхтонкого расщепления изотопов  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{71}\text{Ga}$ ,  $f_1 = 0.6$  и  $f_2 = 0.4$  — их распространенность, коэффициенты  $C_d$  и  $C_{nd}$  описывают вклады компонент спиновой матрицы плотности  $\rho_{J',M';J,M}(t)$ , диагональных и недиагональных по полному моменту  $J$ ,  $\tau_{sc}$  — время спиновой релаксации связанных электронов, входящее в уравнение (3). Функция  $F(\Delta t)$  равна 1 при  $\Delta t = 0$  и описывает потерю когерентности недиагональных компонент матрицы плотности  $\rho_{I+1/2,M;I-1/2,M}(t)$  и  $\rho_{I-1/2,M;I+1/2,M}(t)$ . Главный вклад в этот процесс вносит не спиновая релаксация электронов и ядер, а неоднородное уширение частот  $\Omega_1$  и  $\Omega_2$ .



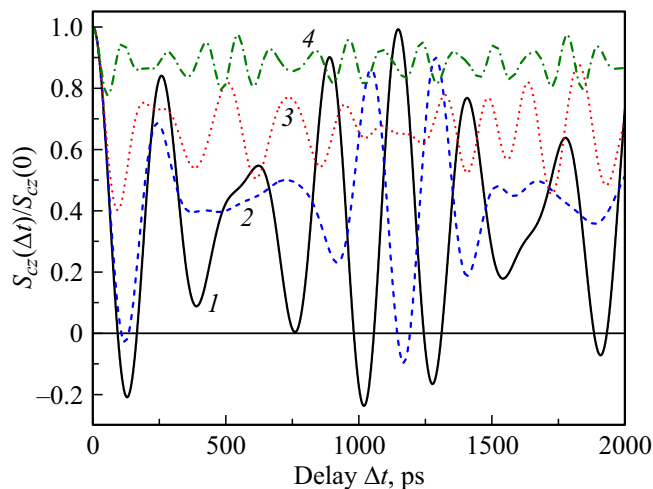
**Рис. 3.** Измеренный (точки) и рассчитанный (пунктир) сигналы спин-зависимой рекомбинации как функция временной задержки. Сплошная кривая получена сглаживанием экспериментальных данных. На вставке — спектры ФЛ при двух значениях задержки,  $\Delta t = 150$  и  $250$  пс [20].

В [13] функция  $F(\Delta t)$  аппроксимировалась экспонентой  $\exp(-\Delta t/T_2^*)$  с подгоночным временным параметром  $T_2^*$ .

Предсказанные спиновые биения обнаружены в совместной экспериментально-теоретической работе [20] (рис. 3). Это позволило определить константу сверхтонкого взаимодействия для межузельного иона  $\text{Ga}^{2+}$  без использования магнитного поля.

#### 4.1. Влияние магнитного поля на спиновые биения

В продольном магнитном поле  $\mathbf{V} \parallel z$ , как и в отсутствие поля, происходит смешивание состояний  $|1/2, M - 1/2\rangle$  и  $|-1/2, M + 1/2\rangle$  с одной и той же



**Рис. 4.** Спиновые биения локализованного электрона в продольном магнитном поле  $B_z = 0$  (кривая 1), 65 (2), 150 (3) и 300 мТл (4). Для наглядности при расчете пренебрегалось спиновой релаксацией и неоднородным уширением частот  $\Omega_k$ .

проекцией суммарного углового момента  $M$ , одноэлектронные состояния  $|1/2, I\rangle$  и  $|-1/2, -I\rangle$  смешивания не испытывают и в спиновые биения вклада не вносят. При  $I = 3/2$  имеется три пары смешивающихся состояний с  $M = 0, \pm 1$ . Их зеемановское расщепление зависит от  $M$ :

$$E_{M;\pm} = \frac{\hbar}{2} \left( \Omega \pm \sqrt{\Omega^2 + \beta^2 + M\Omega\beta} \right). \quad (10)$$

Это означает, что в магнитном поле для каждого изотопа спиновые биения происходят одновременно на трех частотах  $\Omega_M = \sqrt{\Omega^2 + \beta^2 + M\Omega\beta}$ . Опуская промежуточные выкладки, приведем окончательный результат для спиновой поляризации связанных электронов

$$S_{cz}(\Delta t) = S_{cz}(0)H(\Omega, \beta; \Delta t), \quad (11)$$

$$H(\Omega, \beta; \Delta t) = \frac{1}{4} \left( 1 + \frac{\beta^2 + \Omega^2 \cos \Omega_0 \Delta t}{\Omega^2 + \beta^2} + \frac{1}{4} \sum_{M=\pm 1} \frac{(\Omega + 2M\beta)^2 + 3\Omega^2 \cos \Omega_M \Delta t}{\Omega^2 + \beta^2 + M\Omega\beta} \right).$$

При наличии двух изотопов спиновая динамика определяется средневзвешенным вкладом двух функций  $H(\Delta t)$

$$S_{cz}(\Delta t) = S_{cz}(0) [f_1 H(\Omega_1, \beta; \Delta t) + f_2 H(\Omega_2, \beta; \Delta t)], \quad (12)$$

в которых  $\frac{\Omega_M}{\Omega_0}$  нужно заменить на  $\Omega_M^{(k)} = \sqrt{\Omega_k^2 + \beta^2 + M\Omega_k\beta}$ , где  $k = 1, 2$ . Для учета спиновых потерь не осциллирующую составляющую  $S_{cz}$  нужно умножить на  $\exp(-\Delta t)/\tau_{sc}$ , а осциллирующую — на  $F(\Delta t)$ .

На рис. 4 приведены кривые спиновых биений, рассчитанные для четырех значений продольного магнитного поля, включая  $B_z = 0$ . С ростом поля сверхтонкая связь подавляется, усредненное по времени значение электронной спиновой поляризации возрастает, а амплитуда осцилляций уменьшается. В магнитном поле 65 мТл размах спиновых биений (кривая 2) уменьшается незначительно по сравнению с биениями в отсутствие поля (кривая 1). Это не согласуется с экспериментальным наблюдением сильного подавления осцилляций уже в поле 65 мТл [20], что требует дополнительного изучения.

#### 5. Заключение

Спин электрона, локализованного на глубоком парамагнитном центре в GaAsN, эффективно взаимодействует с ядерным спином центра. Этот случай сильной сверхтонкой связи только с одним ядром разительно отличается от привычной ситуации электрона, связанного на доноре или локализованного в квантовой точке, когда электронный спин взаимодействует одновременно с большим количеством  $\sim 10^5$  ядер решетки кристалла и его связь с каждым отдельным ядром является слабой. Мы рассмотрели проявление сверхтонкого взаимодействия электрона с одним ядром при спин-зависимой безызлучательной рекомбинации, изучаемой

по зависимости интенсивности и степени циркулярной поляризации межзонной фотолуминесценции от мощности накачки и внешнего магнитного поля. Исследования проводились как в условиях стационарного возбуждения, так и с разрешением по времени задержки в оригинальном методе „накачка—зондирование“ в тонких эпитаксиальных слоях и квантовых ямах.

Недавно появилось сообщение об исследовании спин-зависимой рекомбинации при комнатной температуре в периодической структуре, образованной нанодисками GaAsN, встроенными в одномерные нанокolonны из GaAs [21]. Установлено, что в каждом диске располагается 2–3 дефекта, ответственных за рекомбинацию. Благодаря эффекту спинового фильтра увеличение интенсивности накачки приводит к росту на порядок спиновой поляризации фотоэлектронов в зоне проводимости. Появление нанообъектов, содержащих всего несколько глубоких центров, знаменует начало нового этапа исследования спин-зависимой рекомбинации и сверхтонкого электрон-ядерного взаимодействия.

### Благодарности

Авторы выражают благодарность Л.А. Бакалейникову за полезное обсуждение рукописи. Е.Л. Ивченко благодарит за поддержку Российский фонд фундаментальных исследований (проект № 17-52-16020).

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] C. Weisbuch, G. Lampel. Sol. St. Commun., **14**, 141 (1974).
- [2] R.C. Miller, W.T. Tsang, W.A. Nordland, jr. Phys. Rev. B, **21**, 1569 (1980).
- [3] D. Paget. Phys. Rev. B, **30**, 931 (1984).
- [4] В.К. Калевич, Е.Л. Ивченко, М.М. Афанасьев, А.Ю. Ширяев, А.Ю. Егоров, В.М. Устинов, Б. Пал, Я. Масумото. Письма ЖЭТФ, **82**, 509 (2005).
- [5] L. Lombez, P.-F. Braun, H. Carrère, B. Urbaszek, P. Renucci, T. Amand, X. Marie, J.C. Harmand, V.K. Kalevich. Appl. Phys. Lett., **87**, 252115 (2005).
- [6] V.K. Kalevich, A.Yu. Shiryaev, E.L. Ivchenko, A.Yu. Egorov, L. Lombez, D. Lagarde, X. Marie, T. Amand. Письма ЖЭТФ, **85**, 208 (2007).
- [7] E.L. Ivchenko, V.K. Kalevich, A.Yu. Shiryaev, M.M. Afanasiev, Y. Masumoto. J. Phys.: Condens. Matter., **22**, 465804 (2010).
- [8] X.J. Wang, I.A. Buyanova, F. Zhao, D. Lagarde, A. Balocchi, X. Marie, C.W. Tu, J.C. Harmand, W.M. Chen. Nature Materials, **8**, 198 (2009).
- [9] X.J. Wang, Y. Puttison, C.W. Tu, Aaron J. Ptak, V.K. Kalevich, A.Yu. Egorov, L. Geelhaar, H. Riechert, W.M. Chen, I.A. Buyanova. Appl. Phys. Lett., **95**, 241904 (2009).
- [10] V.K. Kalevich, M.M. Afanasiev, A.Yu. Shiryaev, A.Yu. Egorov. Phys. Rev. B, **85**, 035205 (2012).
- [11] В.К. Калевич, М.М. Афанасьев, А.Ю. Ширяев, А.Ю. Егоров. Письма ЖЭТФ, **96**, 635 (2012).
- [12] Y. Puttison, 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] V.G. Ibarra-Sierra, J.C. Sandoval-Santana, S. Azaizia, H. Carrère, L.A. Bakaleinikov, V.K. Kalevich, E.L. Ivchenko, X. Marie, T. Amand, A. Balocchi, A. Kunold. Phys. Rev. B, **95**, 195204 (2017).
- [14] C. Sandoval-Santana, A. Balocchi, T. Amand, J.C. Harmand, A. Kunold, X. Marie. Phys. Rev. B, **90**, 115205 (2014).
- [15] E.L. Ivchenko, L.A. Bakaleinikov, V.K. Kalevich. Phys. Rev. B, **91**, 205202 (2015).
- [16] Е.Л. Ивченко, Л.А. Бакалейников, М.М. Афанасьев, В.К. Калевич. ФТТ, **58**, 1490 (2016).
- [17] М.И. Дьяконов, В.И. Перель. ЖЭТФ, **63**, 1883 (1972).
- [18] J.C. Sandoval-Santana, V.G. Ibarra-Sierra, S. Azaizia, H. Carrère, L.A. Bakaleinikov, V.K. Kalevich, E.L. Ivchenko, X. Marie, T. Amand, A. Balocchi, A. Kunold. J. Mater. Sci. Mater. Electron., **29**, 15307 (2018).
- [19] W.J.H. Leyland, G.H. John, R.T. Harley, M.M. Glazov, E.L. Ivchenko, D.A. Ritchie, I. Farrer, A.J. Shields, M. Henini. Phys. Rev. B, **75**, 165309 (2007).
- [20] S. Azaizia, H. Carrère, J.C. Sandoval-Santana, V.G. Ibarra-Sierra, V.K. Kalevich, E.L. Ivchenko, L.A. Bakaleinikov, X. Marie, T. Amand, A. Kunold, A. Balocchi. Phys. Rev. B, **97**, 155201 (2018).
- [21] Shula Chen, Yuqing Huang, D. Visser, S. Anand, I.A. Buyanova, Weimin M. Chen. Nature Commun., **9**, 3575 (2018).

Редактор Г.А. Оганесян

### Hyperfine interaction and Shockley–Read–Hall recombination in semiconductors

*E.L. Ivchenko<sup>1</sup>, V.K. Kalevich<sup>1</sup>, A. Kunold<sup>2</sup>, A. Balocchi<sup>3</sup>, X. Marie<sup>3</sup>, T. Amand<sup>3</sup>*

<sup>1</sup> Ioffe Institute,

194021 St. Petersburg, Russia

<sup>2</sup> Universidad Autónoma Metropolitana Azcapotzalco,  
02200 Mexico City, Mexico

<sup>3</sup> Université de Toulouse, INSA-CNRS-UPS,  
31077 Toulouse, France

**Abstract** A review is given of experimental and theoretical studies of the optical orientation and spin-dependent recombination in a semiconductor in a magnetic field with normal incidence of circularly polarized radiation on the sample surface. The experiments were carried out on GaAs<sub>1-x</sub>N<sub>x</sub> alloys in which the deep paramagnetic centers responsible for the spin-dependent recombination are in-terstitial Ga<sup>2+</sup> displacement defects. It is established that, in the materials under consideration, the hyperfine interaction of a localized electron with a nucleus of the paramagnetic center remains strong even at room temperature. The theory is compared with the experiment performed both in the stationary mode of excitation and in the conditions of the two-pulse pump-probe technique. An analytical formula has been derived for spin beats in a magnetic field.