

## ЭЛЕКТРОДИПОЛЬНЫЕ СПИНОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ НЕЙТРАЛЬНОГО АКЦЕПТОРА $Mn^0_{Ga}$ В $GaAs$

Н.П. Баран, В.Я. Бротусь<sup>1)</sup>, В.М. Максименко, А.В. Марков<sup>2)</sup>,  
Ю.Г. Семенов

Институт полупроводников АН Украины  
252028, Киев

<sup>1)</sup> Киевский политехнический институт  
252036, Киев

<sup>2)</sup> Гуредмет  
109017, Москва

Поступила в редакцию 27 ноября 1991 г.

В кристаллах  $p$ - $GaAs$ , легированных  $Mn$ , экспериментально и теоретически исследованы зависимости интенсивности линий спинового поглощения центра  $Mn^0_{Ga}$  ( $Mn^{2+} + h$ ) в  $H_1$ - и  $E_1$ -компонентах СВЧ поля от направления внешнего магнитного поля  $H_0$ . Показано, что спектры спинового резонанса обусловлены электродипольными, а не магнитодипольными переходами.

Методом ЭПР в кристаллах  $GaAs$ , легированных  $Mn$ , было идентифицировано два типа центров: нейтральный акцептор  $Mn^0$ , представляющий собой обменно-взаимодействующую слабо локализованную дырку с пятью  $3d$ -электронами остова ( $Mn^{2+} + h$ , полный спин  $F = 1$ ) и ионизированный акцептор  $Mn^-$  ( $Mn^{2+}$ ,  $S = 5/2$ )<sup>1-3</sup>. В этих работах подразумевалось, что регистрируемые спектры ЭПР обусловлены магнитодипольными переходами. Однако, наблюдаемые для центра  $Mn^0$  угловые зависимости интенсивностей линий ЭПР при малых значениях констант кристаллического поля<sup>2</sup>, сравнимые интенсивности линий ЭПР для переходов  $\Delta M_F = 1$  и  $\Delta M_F = 2$ <sup>1,2</sup> и обнаруженный нами факт, что измеренная из спектров ЭПР по эталонному образцу концентрация центров  $N_{Mn^0}$  могла на порядок и более превосходить  $N_{Mn^-}$ , определенную другими методами, указывает на возможность того, что спиновый резонанс обусловлен электродипольными спиновыми переходами (ЭДСП)<sup>4</sup>. Настоящая работа посвящена выяснению природы спиновых переходов  $Mn^0$  в  $GaAs$   $p$ -типа.

Измерения ЭПР проводились в интервале температур 4.2 - 100 К на радиоспектрометре Varian E-12 в  $x$ -диапазоне с модуляцией магнитного поля на частоте 100 кГц. Исследовались кристаллы  $GaAs$ , выращенные методом Чохральского под слоем  $В_2O_3$  с введением  $Mn$  в расплав. Определенная методом искровой масс-спектрометрии и из холловских измерений  $N_{Mn}$  изменялась в диапазоне  $10^{16} - 10^{18} \text{ см}^{-3}$ . Ориентированные образцы имели размер  $2 \times 2 \times 8$  мм и помещались в цилиндрический резонатор типа  $H_{011}$  в пучность  $H_1$ -компоненты (центр резонатора), или в пучность  $E_1$ -компоненты (половина радиуса резонатора на полувысоте), где, согласно экспериментальным оценкам, амплитуда  $H_1$  почти на три порядка меньше, чем в центре резонатора.

На рис.1 показаны спектры спинового поглощения в пучности  $H_1$ - и  $E_1$ -компонент СВЧ поля, обозначаемые в дальнейшем " $H_1$ - и  $E_1$ -спектры". Наблюдаемый  $H_1$ -спектр  $Mn^0$  и  $Mn^-$  в  $GaAs$  подобен приведенному на рис.1,2, минимальная ширина линии  $Mn^0$  ( $\Delta M_F = 1$ ) при ориентации  $H_0 \parallel [100]$  для некоторых образцов составляла  $\Delta H_{pp} = 380$  Гс, т.е. была близка к расстоянию между крайними пиками компонент сверхтонкого взаимодействия (СТВ) линии  $Mn^0$  ( $\Delta M_F = 2$ ), для которой константа СТВ  $A = 62$  Гс,  $\Delta H_{pp}^{СТВ} = 50$  Гс.

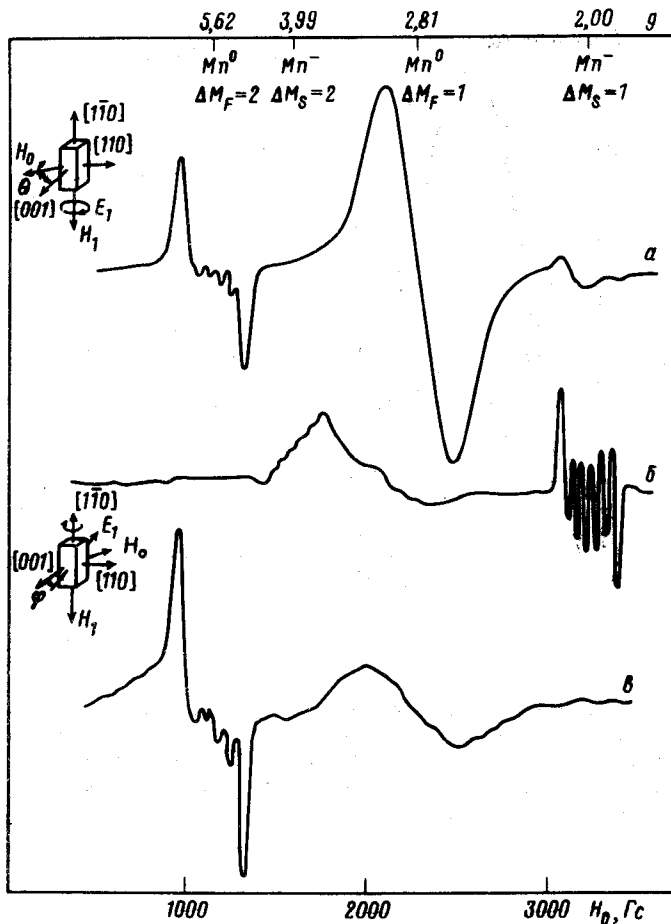


Рис. 1. Спектры спинового поглощения GaAs < Mn >: а -  $H_1$  - спектр,  $T = 4,2$  К,  $\theta = (\vec{H}_0, [001]) = 0^\circ$ ,  $N_{Mn} = 5 \cdot 10^{17}$  см $^{-3}$ ; б -  $H_1$  - спектр,  $T = 20$ К,  $\theta = 35^\circ$ ,  $N_{Mn} = 9 \cdot 10^{16}$  см $^{-3}$ ; в -  $E_1$  - спектр,  $T = 4,2$  К,  $\varphi = (\vec{E}_1, [001]) = 70^\circ$ ,  $\vec{H}_0 \perp \vec{E}_1$ ,  $N_{Mn} = 5 \cdot 10^{17}$  см $^{-3}$

В  $H_1$ -спектрах выше 11 К линии  $Mn^0$  исчезают и появляется возможность детектировать линию с  $g = 3,990 \pm 0,005$  (рис.1б). В образцах с низкой концентрацией  $Mn^0$  удастся разрешить шесть компонент этой линии,  $A = 56$  Гс. Равенство констант СТВ для линий с  $g = 2,000$  и  $g = 3,990$  и то, что вторая линия находится вблизи половинного поля первой, показывает, что они принадлежат переходам  $\Delta M_S = 1$  и  $\Delta M_S = 2$  центра  $Mn^-$ .

$E_1$ -спектры детектировались для центра  $Mn^0$  ( $\Delta M_F = 1,2$ ) и  $Mn^-$  ( $\Delta M_S = 2$ ), насколько нам известно, в кристаллах  $A_3B_5$  они наблюдаются впервые. Для  $Mn^0$  наблюдалось изменение интегральной интенсивности сигналов поглощения  $I_1$  и  $I_2$ , соответствующих переходам  $\Delta M_F = 1$  и  $\Delta M_F = 2$  при различных ориентациях осей кристалла по отношению к направлениям  $\vec{H}_0$  в  $H_1$ -спектрах или  $\vec{E}_1$  и  $\vec{H}_0$  в  $E_1$ -спектрах (рис.2).

Для описания наблюдаемых эффектов рассмотрим модель центра  $Mn^{2+} + h$ , которой отвечает группа точечной симметрии  $T_d$ . Оператор возмущения, определяющий поглощение СВЧ мощности в кристаллографической системе координат  $X, Y, Z$  имеет вид <sup>4</sup>

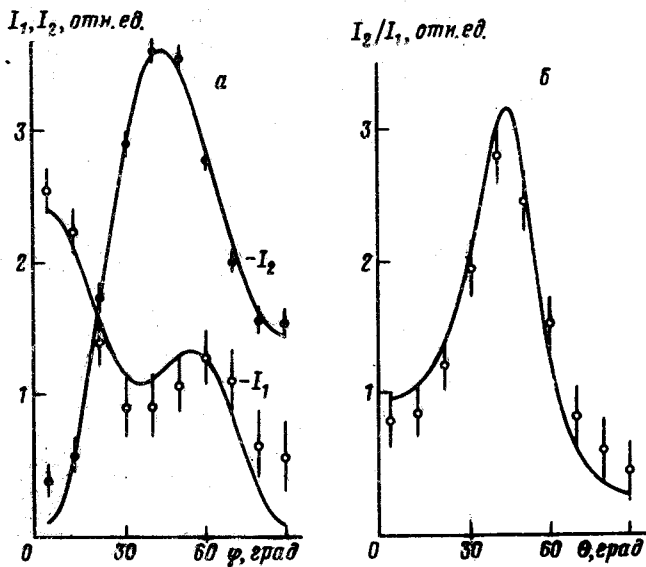


Рис. 2. Угловые зависимости интегральных интенсивностей сигналов спинового поглощения  $Mn^0$  в  $GaAs$   $T = 4,2$  К,  $N_{Mn} = 5 \cdot 10^{17}$   $cm^{-3}$ . Сплошные линии - теоретические кривые, вычисленные по (7) и (8) для геометрии эксперимента, приведенной на вставках рис. 1:  $a$  -  $E_1$  - спектр  $I_1 \approx F_1(\vec{\epsilon}, \vec{h}) = \cos^2 \varphi (1 - 3 \sin^2 \varphi \cos 2\varphi)$ ,  $I_2 \approx F_2(\vec{\epsilon}, \vec{h}) = (1/4) \sin^2 \varphi (1 + 5 \cos^2 \varphi + 6 \cos^4 \varphi)$ ;  $b$  -  $H_1$ -спектр,  $I_2/I_1 \approx F_2(\vec{\epsilon}, \vec{h})/F_1(\vec{\epsilon}, \vec{h}) = (1/8) [1 + 3 \cos^2 \theta (1 + \sin^2 \theta)] / [(1/8) (1 - (3/4) \sin^2 2\theta)]$

$$V(t) = V_{E_1}(t) + V_{H_1}(t), \quad (1)$$

$$V_{E_1}(t) = \alpha [E_{1x}(t) \{S_y S_z\} + E_{1y}(t) \{S_x S_z\} + E_{1z}(t) \{S_x S_y\}], \quad (2)$$

$$V_{H_1}(t) = g \mu_B \vec{H}_1(t) \vec{S}. \quad (3)$$

Здесь  $\vec{E}_1(t) = \vec{E}_1 \sin \omega t$ ,  $\vec{H}_1(t) = \vec{H}_1 \cos \omega t$  - электрическая и магнитная компоненты СВЧ поля с частотой  $\omega$  в резонаторе, которым отвечают операторы электродипольного (2) и магнитодипольного (3) взаимодействий, определяемые константами  $\alpha$  и  $g \mu_B$ ,  $\vec{S}$  - оператор эффективного спина основного состояния центра. Так как в эксперименте зеемановское взаимодействие, описываемое спин-гамильтонианом  $H = g \mu_B \vec{H}_0 \vec{S}$ , превосходит другие взаимодействия, вероятности переходов между магнитными подуровнями будут определяться  $|M_{M,M'}|^2$  - матричными элементами оператора (1), вычисленными на собственных векторах  $|M\rangle$  оператора  $S_z'$ , где  $z'$  направлено вдоль  $\vec{H}_0$ . Вычислив матричные элементы ЭДСП и магнитодипольных переходов, получаем

$$|M_{M,M-2}^E|^2 = \frac{1}{4} \alpha^2 E_1^2 (S_+^2)_{M,M-2}^2 F_2(\vec{\epsilon}, \vec{h}) \quad (4)$$

$$|M_{M,M-1}^E|^2 = \frac{1}{4} \alpha^2 E_1^2 (M - \frac{1}{2})^2 (S_+)^2_{M,M-1} F_1(\vec{\epsilon}, \vec{h}) \quad (5)$$

$$|M_{M,M-1}^H|^2 = \frac{1}{16} g^2 \mu_B^2 H_1^2 (S_+)^2_{M,M-1} \quad (6)$$

где  $S_+ = S_x + i S_y$ ; зависимость от направлений  $\vec{\epsilon} = \vec{E}_1 / |\vec{E}_1|$  и  $\vec{h} = \vec{H}_0 / |\vec{H}_0|$  для ЭДСП определяется выражениями

$$F_1(\vec{e}, \vec{h}) = 1 - [e_x^2(h_x^2 + 4h_y^2)]_{\text{цп}} + 2[e_x e_y h_x h_y (1 - 4h_x^2)]_{\text{цп}} \quad (7)$$

$$F_2(\vec{e}, \vec{h}) = [e_x^2(h_x^2 + h_y^2 h_z^2)]_{\text{цп}} - 2[e_x e_y h_x h_y (h_x^2 + h_y^2)]_{\text{цп}}, \quad (8)$$

где [...]цп означает сумму трех слагаемых, полученных в результате циклической перестановки индексов  $x, y, z$ . Вероятности спинового резонанса, соответствующего переходам  $M \rightarrow M - 1$ , будут содержать наряду с вкладом (5) и (6) их интерференционный член  $M_{M, M-1}^{E, H}$ , который в нашем случае не актуален. Согласно (7) и (8) ЭДСП с правилами отбора  $\Delta M_S = 2$  и  $\Delta M_S = 1$  характеризуются угловыми зависимостями, в то время как "разрешенные" магнитодипольные переходы ее не имеют. Что касается "запрещенных" магнитодипольных переходов ( $\Delta M_S = 2$ ), то в настоящих экспериментах они не проявлялись. Как видно из рис. 2, теоретические кривые  $F_1(\vec{e}, \vec{h})$  и  $F_2(\vec{e}, \vec{h})$  хорошо описывают экспериментальные зависимости как в пучности электрического так и в пучности магнитного СВЧ поля.

Для количественной оценки вероятностей ЭДСП в резонатор наряду с исследуемым образцом GaAs < Mn >, имевшем форму восьмигранной призмы, был помещен эталонный образец - кристалл CdS, в котором наблюдался спектр ЭПР мелких доноров <sup>6</sup> с  $g_3 = 1,774$  и числом парамагнитных центров  $N_H = 6 \cdot 10^{14}$ . Сравнивались интегральные интенсивности спектра ЭПР эталонного образца  $I_{13}^H$ , для которого ЭДСП не актуальны, и  $I_{1H}^E$   $N_H$ -спектра  $Mn^0$  ( $\Delta M_F = 1$ ), обусловленного ЭДСП. Параметр  $\alpha$  оценивался по формуле (в атомных единицах)

$$|\alpha| = g_3 \frac{\sqrt{2}}{137} \frac{\rho}{r_0} \left[ \frac{I_{1H}^E N_H}{I_{13}^H N_E} \right]^{1/2} \quad (9)$$

Формула (9) получена в пренебрежении влияния образца на распределение полей в резонаторе типа  $H_{011}$  (вблизи геометрического центра  $|\vec{H}_1|$  максимален и практически постоянен, а  $|\vec{E}_1|$  пропорционален радиальной переменной) с использованием выражений (5) и (6).

В (9) предполагается, что образец имеет цилиндрическую форму с радиусом  $r_0$ ,  $\rho = [(3,832/R)^2 + (\pi/L)^2]^{-1/2} \approx 0,5$  см - геометрический фактор резонатора радиуса  $R$  и высоты  $L$ ,  $N_E = 6 \cdot 10^{15}$  - число центров  $Mn^0$  в образце, оцененное из холловских измерений. Подстановка приведенных значений и  $r_0 = 0,12$  см в (9) дает  $|\alpha| \approx 1$  ат. ед., что значительно превышает известные величины: например, для  $Mn^+$  в Si  $\alpha$  на два порядка меньше <sup>7</sup>. Тем не менее, этот результат не является неожиданным для центра  $Mn^{2+} + h$ : согласно оценке <sup>5</sup>, для дырки, локализованной на акцепторе в  $A_3B_5$  вероятности ЭДСП могут на шесть порядков превышать вероятности магнитодипольных переходов.

На основании полученных результатов можно сделать вывод о том, что "спектр ЭПР" центра  $Mn^0$  обусловлен электродипольными спиновыми переходами, по сравнению с которыми магнитодипольные переходы практически не наблюдаются даже в наиболее благоприятных для них условиях. Наблюдение ЭДСП в центре резонатора связано с их большой вероятностью и отличием  $|\vec{E}_1|$  от нуля в образце конечного размера.

1. J.Schneider, U.Kaufmann, W.Wilkening et al. Phys. Rev. Lett. 59, 240 (1987).
2. В.Ф.Мастеров, К.Ф.Штельмах, М.Н.Барбашов, ФТП 22, 654 (1988).
3. Н.С.Аверкиев, А.А.Гуткин, О.Г.Красикова и др., ФТП 23, 73 (1989).
4. М.Д.Гляничук, В.Г.Грачев, М.Ф.Дейген и др., Электрические эффекты в радиоспектроскопии. М.: Наука 1981.
5. Э.И.Рашба, В.И.Шека, ФТТ 6, 576, (1964).
6. В.Я.Братусь, И.М.Зарицкий, С.Г.Пекарь и др., ФТП 14, 1339 (1980).
7. G.N.Ludwig, F.S.Ham, Phys. Rev. Lett. 8, 210 (1962).