

ОПТИЧЕСКОЕ НАБЛЮДЕНИЕ МНОГОФОТОННОГО ЯМР ПОГЛОЩЕНИЯ В ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ КРИСТАЛЛАХ

В.Л.Беркович, В.И.Сафаров

Впервые наблюден многофотонное (до 5 квантов) ЯМР поглощение в твердом теле при исследовании методом оптической ориентации квадрупольно-возмущенных ЯМР переходов As⁷⁵ в смешанных кристаллах GaAs – AlAs.

В теории магнитного резонанса строгое рассмотрение уравнения Шредингера показывает, что при воздействии на спиновую систему не вращающимся, а линейно поляризованным осциллирующим полем H_1 , кроме основного резонанса на частоте ω_0 , возможны дополнительные резонансы на кратных частотах $\omega = \omega_0/n$; в общем случае n – любое целое число [1]. Это соответствует переходам с одновременным поглощением " n " РЧ квантов [2]. Однако, такие резонансы значительно слабее основного. Оценки показывают, что для $n = 3$, например, [3] это ослабление определяется фактором порядка $(\gamma H_1/\omega_0)^2$, где γ – гиromагнитное отношение. При реально достижимых значениях H_1 (несколько гаусс) наблюдать такие переходы возможно, очевидно лишь для резонанса на малых частотах, что представляет значительные трудности при использовании обычных ЯМР методов.

Новые возможности для исследования резонансов в малых полях дают оптические способы, основанные на применении метода оптической ориентации в полупроводниках [4 – 7]. Здесь значительная ядерная намагниченность достигается за счет динамической поляризации ядер решетки ориентированными по спину неравновесными фотозелектронами. Кроме того, поляризованные ядра вследствие сверхтонкого взаимодействия оказывают сильное обратное влияние на спиновую ориентацию электронов, которая легко детектируется оптически. Это дает возможность,

в частности, следя за электронной ориентацией по поляризации рекомбинационной люминесценции, осуществить оптическое детектирование магнитного резонанса ядер решетки полупроводника [4,5].

В данной работе оптическим способом наблюдено многофотонное поглощение на квадрупольно возмущенном переходе As⁷⁵ (спин 3/2) в твердых растворах Ga_{0,9}Al_{0,1}As, при 4,2К. В геометрии, когда внешнее поле H_0 перпендикулярно возбуждающему лучу света, и не наблюдаются обычные ЯМР переходы [6], нами были обнаружены две линии, частоты которых зависели от ориентации кристалла относительно H_0 . Эти линии интерпретируются как переходы $|+3/2\rangle - |-3/2\rangle$ ядра As⁷⁵ при наличии сильного квадрупольного возмущения вдоль кристаллографического направления <111>. Квадрупольное возмущение расщепляет четырехкратно вырожденный уровень As⁷⁵ на два. В слабом внешнем магнитном поле происходит дополнительное дублетное расщепление уровней. Величина зеемановского расщепления квадрупольного уровня $|\pm 3/2\rangle$ зависит от угла θ между H_0 и осью градиента электрического поля [8] (в нашем случае между H_0 и осью <111>):

$$\omega = 3\gamma H_0 \cos \theta. \quad (1)$$

В кристалле имеется четыре неэквивалентных направления <111>. В наших экспериментах внешнее магнитное поле и перпендикулярное ему РЧ поле были ориентированы в плоскости (100), которая совпадала с плоскостью поверхности образца. Для такой ориентации H_0 значение угла θ отличается для двух пар направлений <111>. На эксперименте и наблюдается две линии. На рис. 1 представлена зависимость частоты линий от ориентации кристалла при вращении в плоскости (100). Там же сплошными линиями представлены результаты расчета, исходя из формулы (1), для As⁷⁵. Полученное прекрасное качественное и количественное соответствие однозначно определяет предложенную интерпретацию линий, как переходов между уровнями $|+3/2\rangle - |-3/2\rangle$ ядра As⁷⁵ с сильным квадрупольным возмущением вдоль направления <111>. Такое возмущение может быть вызвано, например замещением атомом алюминия одного из четырех соседних к мышьяку атомов галлия в твердых растворах. Подробнее эти переходы будут рассмотрены в отдельной публикации.¹⁾

Интенсивность наблюденных линий менялась в зависимости от ориентации кристалла — линии относительно усиливались при смещении в малые частоты. Таким образом в данной системе даже в присутствии значительного внешнего поля (~ 100 Гц), когда все остальные ЯМР переходы ядер собственной решетки находятся в области достаточно высоких частот, при соответствующем выборе ориентации кристалла можно наблюдать интенсивную изолированную линию в области малых частот. На рис. 2 представлен типичный оптически зарегистрированный спектр —

¹⁾Как стало известно авторам аналогичные переходы наблюдались в работе Б.П.Захарчени, В.А.Новикова, В.Г.Флейшера (см. "Письма в ЖЭТФ", 26, 316, 1977).

то есть зависимость поляризации люминесценции кристалла от частоты приложенного РЧ поля. В представленной области частот малой РЧ мощности (кривая a) видны две описанные выше линии квадрупольно возмущенного перехода ядра As^{75} . С возрастанием интенсивности РЧ облучения (кривые b и c) низкочастотная линия быстро достигает насыщения, и со стороны малых частот от нее появляются дополнительные линии. Частоты этих линий в два, три, четыре ... раза меньше частоты основной, и эти дополнительные резонансы естественно интерпретируются как многофотонные переходы, то есть переходы с одновременным поглощением двух, трех ... РЧ квантов. При изменении ориентации кристалла (или изменении величины внешнего поля) дополнительные резонансы также смещаются вслед за основными; частоты их все время остаются кратными частоте основного резонанса. То есть сохраняется соотношение $\omega_n/\omega_o = n$.

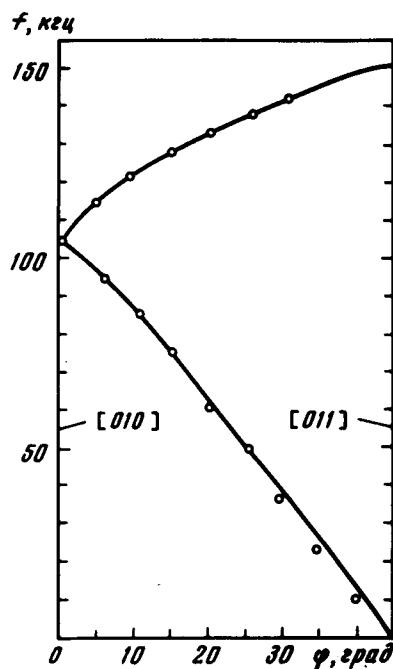


Рис.1. Положение квадрупольно возмущенных резонансов $|+3/2\rangle - |-3/2\rangle$ ядра As^{75} , как функция угла ϕ между направлением магнитного поля и осью $[010]$, при вращении кристалла в плоскости (100) . $H_0 = 82 \text{ Гс}$. Сплошная линия – расчет

Можно было бы думать, что наблюденные резонансы являются однофотонными переходами, вызванными кратными (2ω , 3ω ...) гармониками генератора. Однако, помещая в цепь питания РЧ катушки перестраиваемый узкополосный фильтр, можно было однозначно определить, что наблюдаемые резонансы вызваны именно основной частотой генератора. Так, например, фильтр, подавлявший частоты ω_n , сильно уменьшал именно этот резонанс в спектре, оставляя остальные практически без изменения по интенсивности.

Для обычных ЯМР-переходов рассмотрение правил отбора показывает, что для $H_1 \perp H_0$ должны наблюдаться только нечетные резонансы (поглощение нечетного числа РЧ квантов), четные могут появляться,

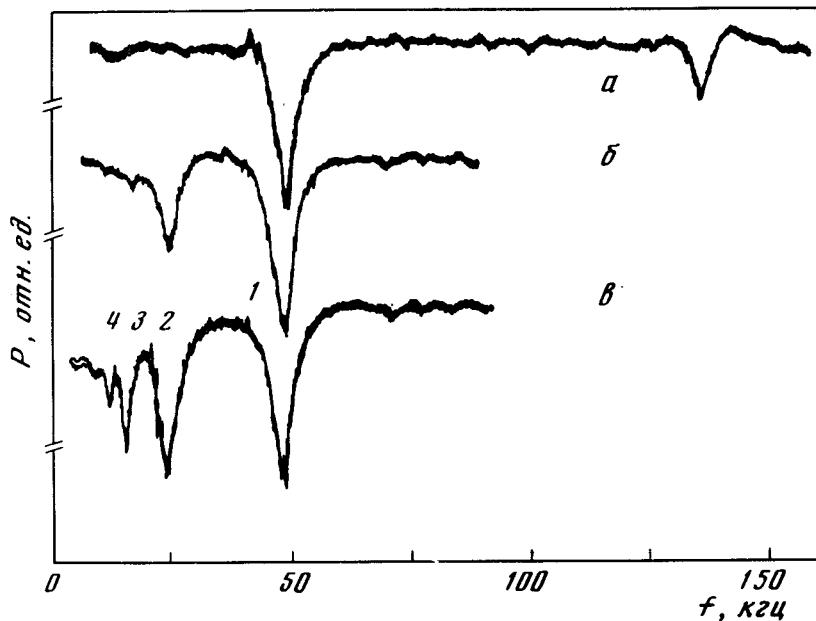


Рис. 2. Зависимость степени циркулярной поляризации люминесценции кристалла $\text{Ga}_{0.9}\text{Al}_{0.1}\text{As}$ от частоты переменного РЧ поля. $H_0 = 82$ Гц. $\phi = 27^\circ$. Спектры получены для различных, возрастающих от "a" к "c", мощностях РЧ поля

если имеется составляющая H_1 , параллельная H_0 [1]. Однако эти простые правила отбора не могут быть непосредственно применены к экспериментально исследованному нами более сложному случаю квадрупольно-возмущенных переходов, где необходим уже, по-видимому, учет взаимной ориентации H_1 , H_0 и градиента электрического поля.

Авторы благодарны Д.З.Гарбузову за предоставление epitаксиальных слоев GaAlAs для наших измерений и М.И.Дьяконову за некоторые обсуждения.

Литература

- [1] J.Winter. Compt. Rend., 241, 375, 1955.
 - [2] J.Margerie, J.Brossel. Compt. Rend., 241, 373, 1955.
 - [3] А.Абрагам. Ядерный магнетизм, ИИЛ, 1963, гл. 2.
 - [4] А.И.Екимов, В.И.Сафаров. Письма в ЖЭТФ, 15, 453, 1972.
 - [5] В.Л.Берковиц, А.И.Екимов, В.И.Сафаров. ЖЭТФ, 65, 346, 1973.
 - [6] М.И.Дьяконов, В.И.Перель, В.Л.Берковиц, В.И.Сафаров. ЖЭТФ, 67, 1912, 1974.
 - [7] В.А.Новиков, В.Г.Флейшер. ЖЭТФ, 71, 778, 1976.
 - [8] А.Абрагам. Ядерный магнетизс, ИИЛ, 1963, гл. 7.
-