

САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

*На правах рукописи*

Кавокин Кирилл Витальевич

**РЕЛАКСАЦИЯ УГЛОВОГО МОМЕНТА И ЭНЕРГИИ В СПИНОВЫХ  
СИСТЕМАХ ЛЕГИРОВАННЫХ ПОЛУПРОВОДНИКОВ**

Специальность 01.04.10– физика полупроводников

Диссертация на соискание ученой степени  
доктора физико-математических наук

Санкт-Петербург

2020

## Оглавление

	Стр
Введение .....	4
Глава 1. Магнитные и обменные взаимодействия в полупроводниках. Оптическая ориентация и механизмы спиновой релаксации электронов и ядер.....	12
1.1. Введение.....	12
1.2. Зеемановское взаимодействие.....	13
1.3. Магнитодипольное взаимодействие.....	14
1.4. Сверхтонкое взаимодействие.....	15
1.5. Спин-орбитальное взаимодействие.....	16
1.6. Квадрупольные взаимодействия.....	18
1.7. Обменное взаимодействие.....	19
1.8. Основные принципы оптической ориентации спинов в полупроводниках.....	21
1.9. Механизмы спиновой релаксации электронов в полупроводниках...24	24
1.10. Механизмы спиновой релаксации ядер в полупроводниках.....26	26
Глава 2. Анизотропное обменное взаимодействие локализованных электронов проводимости в полупроводниковых кристаллах и структурах без центра инверсии.....	28
Глава 3. Спиновая релаксация электронов в полупроводниках n-типа при низких температурах.....	34
3.1. Экспериментальные исследования спиновой релаксации электронов при низких температурах в GaAs n-типа в слабых магнитных полях.....	34
3.2. Теоретическое описание спиновой релаксации электронов при низких температурах в GaAs и подобных ему полупроводниках n-типа..38	38

3.2.1. Релаксация в металлической фазе (механизм Дьяконова-Переля)..	38
3.2.2. Релаксация в диэлектрической фазе.....	42
3.2.2.1. Спиновая релаксация связанных на донорах электронов в отсутствие внешнего магнитного поля.....	42
3.2.2.2. Спиновая релаксация связанных на донорах электронов во внешнем продольном магнитном поле.....	49
Глава 4. Невозмущающие оптические методы измерения намагниченности ядерной спиновой системы.....	55
4.1. Нерезонансное Фарадеевское вращение в поле Оверхаузера.....	56
4.2. Спектроскопия электронных спиновых шумов.....	62
4.3. Фотолюминесценция с тёмными интервалами.....	65
Глава 5. Оптическое исследование термодинамики ядерной спиновой системы полупроводника в слабых магнитных полях.....	68
Глава 6. Спин-решёточная релаксация ядерной спиновой системы в слабых магнитных полях.....	84
6.1. Экспериментальные исследования спин-решёточной релаксации ядер в GaAs.....	84
6.2. Основные механизмы спин-решёточной релаксации ядер в диэлектрическом GaAs.....	89
6.2.1. Квадрупольный отогрев ядерной спиновой системы флуктуирующими электрическими полями.....	92
6.2.2. Особенности динамической поляризации и релаксации ядерных спинов в диэлектрическом p-GaAs.....	96
6.3. Механизмы спин-решёточной релаксации ядер в металлическом n-GaAs.....	101
Заключение.....	105
Список литературы.....	109
Список таблиц.....	117
Список рисунков.....	117

## ВВЕДЕНИЕ

Спиновая физика полупроводниковых структур берёт своё начало от экспериментов Жоржа Лампеля, открывшего в 1968 году оптическую ориентацию электронов и ядер в кремнии. Дальнейшее её развитие связано в основном с прямозонными полупроводниковыми соединениями  $A^{III}B^V$  и  $A^{II}B^{VI}$ . Это обусловлено как значительно лучшими условиями для создания и контроля спиновой поляризации оптическими методами в прямозонных материалах, так и с появлением технологии создания на основе твёрдых растворов этих соединений гетероструктур высокого совершенства. Такое сочетание экспериментальных и технологических возможностей позволило реализовать и исследовать множество ярких спиновых эффектов в объёмных полупроводниках и низкоразмерных структурах – квантовых ямах, квантовых точках, сверхрешётках и т.п. Начиная с 1990-х годов, эти исследования стимулировались надеждой создать на основе спиновых явлений новое поколение устройств для хранения, обработки и передачи информации, сформулированной Д.Авшаломом в виде концепции спинтроники как альтернативы и пути развития полупроводниковой электроники. Это привело к лавинообразному росту объёма исследований и количества публикаций по спиновым явлениям в полупроводниках.

Парадоксальным образом, некоторые важные как для фундаментального знания, так и для возможных приложений области спиновой физики в полупроводниках оставались неисследованными вплоть до начала 21 века. Среди них, в частности, оказалось поведение спиновых систем полупроводника, когда они «предоставлены самим себе», т.е. в отсутствие оптического или электрического возбуждения. Механизмы и характерные времена релаксации внесённых предварительной оптической накачкой или электрической инжекцией в спиновую систему неравновесного момента количества движения и энергии оставались неизвестными как для резидентных (обусловленных легированием) электронов, так и для ядер

решётки. Отсутствие понимания этих процессов даже для таких, в остальном хорошо изученных, материалов, как объёмный арсенид галлия, очевидным образом тормозило дальнейшее развитие спиновой физики в наноструктурах и не давало возможности оценить перспективы создания устройств обработки информации с использованием краткосрочной спиновой памяти.

Настоящая диссертация суммирует работы автора, выполненные в период с 2000 по 2019 гг., в результате которых эти пробелы в понимании фундаментальных свойств спиновых систем полупроводников были, в основном, закрыты.

*Актуальность* работы определяется тем, что в ней получен ответ на важный для дальнейшего развития спиновой физики полупроводниковых структур и полупроводниковой спинтроники вопрос о фундаментальных ограничениях на время жизни неравновесного спина электронов и ядер в различных полупроводниковых системах.

*Научная новизна* работы определяется тем, что в ней впервые:

- 1) Теоретически предсказана анизотропия обменного взаимодействия локализованных электронов проводимости в полупроводниковых структурах без центра инверсии.
- 2) Предложен механизм спиновой релаксации электронов в примесной зоне полупроводника n-типа, обусловленный анизотропией обменного взаимодействия локализованных электронов.
- 3) Экспериментально и теоретически исследована зависимость времени спиновой релаксации электронов в GaAs n-типа от концентрации донорной примеси в широком диапазоне легирования; показано, что при низких температурах релаксация определяется тремя механизмами:

взаимодействием с ядерными спиновыми флуктуациями, анизотропным обменным взаимодействием и механизмом Дьяконова-Переля.

- 4) Экспериментально продемонстрировано Фарадеевское вращение плоскости поляризации света полем Оверхаузера оптически охлаждённых ядер в полупроводниковом микрорезонаторе. Предложены методы невозмущающего контроля намагниченности ядерной спиновой системы по нерезонансному Фарадеевскому вращению и спектрам спинового шума резидентных электронов.
- 5) В прямом эксперименте по адиабатическому перемагничиванию в реальном времени продемонстрировано, что оптически охлаждённая ядерная спиновая система полупроводника строго следует предсказаниям теории спиновой температуры.
- 6) Предложен квадрупольный механизм отогрева ядерной спиновой системы флуктуирующими полями, возникающими при прыжках носителей в примесной зоне.
- 7) Экспериментально и теоретически исследована спин-решёточная релаксация предварительно оптически охлаждённых ядер в полупроводниковых структурах на основе арсенида галлия в слабых магнитных полях при отсутствии оптического возбуждения (включая отогрев ядерной спиновой системы в нулевом поле).

На защиту выносятся следующие положения:

- 1) Обменное взаимодействие локализованных электронов проводимости в полупроводниках и полупроводниковых структурах без центра инверсии анизотропно. Гамильтониан взаимодействия имеет вид скалярного произведения спинов, повернутых друг относительно друга на угол, возрастающий с расстоянием между центрами локализации. В системах с

линейными по волновому вектору спин-орбитальными слагаемыми этот угол прямо пропорционален расстоянию.

- 2) Существует механизм спиновой релаксации локализованных электронов в полупроводниках без центра инверсии, обусловленный анизотропией их обменного взаимодействия. Этот механизм, наряду с релаксацией на спинах ядер решетки, определяет время спиновой релаксации электронов в примесной зоне при гелиевых температурах в отсутствие магнитных полей.
- 3) Существует диапазон концентраций примесей и температур, в котором энергетическая релаксация спиновой системы локализованных на донорах электронов происходит медленнее, чем релаксация их неравновесного спина; в этих условиях продольная спиновая релаксация происходит за счёт прыжков электронов в редких заряженных кластерах доноров и ограничена спиновой диффузией, а оптическая или токовая инжекция неравновесного спина в продольном магнитном поле может сопровождаться охлаждением спиновой системы электронов.
- 4) Поле Оверхаузера поляризованных по спину ядер решётки вызывает Фарадеевское вращение плоскости поляризации света, длина волны которого соответствует области прозрачности полупроводника; индуцированное ядерной намагниченностью Фарадеевское вращение в полупроводниковых микрорезонаторах позволяет осуществлять невозмущающий контроль состояния ядерной спиновой системы.
- 5) Намагниченность охлаждённой ядерной спиновой системы полупроводника в слабых магнитных полях следует предсказаниям теории спиновой температуры даже при наличии квадрупольных взаимодействий, на порядок более сильных, чем диполь-дипольное взаимодействие ядерных спинов.

- 6) Спин-решёточная релаксация ядер в полупроводниках типа GaAs может происходить по механизму отогрева ядерной спиновой системы флуктуирующими электрическими полями, возникающими при термоактивированных прыжках носителей заряда.
- 7) Спин-решёточная релаксация ядер в р-легированных полупроводниках типа GaAs после их оптической накачки происходит на три порядка быстрее, чем в полупроводниках n-типа, в результате флуктуаций зарядового состояния донор-акцепторных пар.

**Апробация работы:** Результаты диссертации докладывались на семинарах ФТИ им. А.Ф.Иоффе РАН и Лаб. Оптики спина им. Уральцева СПбГУ, а также на следующих конференциях:

International Conference on Physics of Semiconductors (ICPS-26),  
Edinburgh, UK (2002);

Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN-12),  
Hangzhou, China (2012);

Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN-12),  
Hersonissos, Greece (2013);

International Conference on Physics of Semiconductors (ICPS-34),  
Montpellier, France (2018);

IV International Conference on Terahertz Emission, Metamaterials and  
Nanophotonics, Lecce, Italy (2019).

**Публикации** Содержание работы отражено в 22 научных статьях в журналах, индексируемых системами цитирования Web of Science и Scopus.

Список публикаций автора по теме диссертации:

1. *Kavokin K.V., Portnoi M.E.* Spin-orbit terms in multi-subband electron systems: a bridge between bulk and two-dimensional Hamiltonians// *Semiconductors* — 2008 — Vol.42 — P.989
2. *Kavokin K. V.* Spin relaxation of localized electrons in n-type semiconductors// *Semic. Sci. Technol.* — 2008. — Vol. 23. — 114009.
3. *V.K.Kalevich, K.V.Kavokin, I.A.Merkulov and M.R.Vladimirova* Ch.12 “Dynamic nuclear polarization and nuclear fields” in *Spin Physics in Semiconductors (2nd edition)* / ed. by M. I. Dyakonov — Berlin : Springer-Verlag, 2017.
4. *Kavokin K.V.* Anisotropic exchange interaction of localized conduction-band electrons in semiconductors// *Phys.Rev.B* — 2001 — Vol.64 — P.075305.
5. *Kavokin K.V.* Symmetry of anisotropic exchange interactions in semiconductor nanostructures// *Phys. Rev. B* — 2004 — Vol.69 — P.075302.
6. *Kavokin K.V.* Optical manifestations of electron spin transport and relaxation in semiconductors// *physica status solidi (a)* — 2002 — Vol.191 — P.221.
7. *Dzhioev R.I., Kavokin K.V., Korenev V.L., Lazarev M.V., Meltser B.Ya., Stepanova M.N., Zakharchenya B.P., Gammon D., Katzer D.S.* Low-temperature spin relaxation in n-type GaAs// *Phys.Rev.B* — 2002 — Vol.66 — P.245204.
8. *Belykh V. V., Kuntsevich A. Yu., Glazov M. M., Kavokin K. V., Yakovlev D. R., and Bayer M.* Quantum Interference Controls the Electron Spin Dynamics in n-GaAs// *Phys. Rev. X* — 2018 — Vol.8 — 031021.
9. *Belykh V.V., Kavokin K.V., Yakovlev D.R., Bayer M.* Electron charge and spin delocalization revealed in the optically probed longitudinal and transverse spin dynamics in n-GaAs// *Physical Review B* — 2017 — Vol.96 — P.241201.
10. *Dzhioev R.I., Kavokin K.V., Korenev V.L., Lazarev M.V., Poletaev N.K., Zakharchenya B.P., Stinaff E.A., Gammon D., Bracker A.S., Ware M.E.* Suppression of Dyakonov-Perel spin relaxation in high-mobility n-GaAs// *Phys. Rev. Lett.* — 2004 — Vol.93 — P.216402.
11. *Giri R., Cronenberger S., Vladimirova M., Scalbert D., Kavokin K.V., Glazov M.M., Nawrocki M., Lemaître A., and Bloch J.* Giant photoinduced Faraday rotation due to the spin-polarized electron gas in an n-GaAs microcavity// *Phys.Rev.B* — 2012 — Vol.85. — P.195313.
12. *Giri R., Cronenberger S., Glazov M. M., Kavokin K. V., Lemaître A., Bloch J., Vladimirova M., Scalbert D.* Nondestructive Measurement of Nuclear Magnetization by Off-Resonant Faraday Rotation” // *Physical Review Letters*, 2013. — Vol. 111, — № 8. — P. 087603

13. Ryzhov I. I., Poltavtsev S. V., Kavokin K. V., Glazov M. M., Kozlov G. G., Vladimirova M., Scalbert D., Cronenberger S., Kavokin A. V., Lemaître A., Bloch J., Zapasski V. S., Measurements of nuclear spin dynamics by spin-noise spectroscopy.// Applied Physics Letters — 2015 — V.106 — P.242405. doi: 10.1063/1.4922771.
14. Ryzhov I. I., Kozlov G. G., Smirnov D. S., Glazov M. M., Efimov Yu. P., Eliseev S. A., Lovtcius V. A., Petrov V. V., Kavokin K. V., Kavokin A. V., and Zapasski V. S., Spin noise explores local magnetic fields in a semiconductor// Sci. Rep. — 2016 — V.6 — P.21062.
15. Kotur, M.; Dzhioev, R. I.; Kavokin, K. V.; et al. Nuclear Spin Relaxation Mediated by Fermi-Edge Electrons in n-Type GaAs// JETP LETTERS — 2014 — Vol.99, P.37.
16. Kotur M., Dzhioev R. I., Vladimirova M., Jouault B., Korenev V. L., and Kavokin K. V., Nuclear spin warm up in bulk n-GaAs// Phys. Rev. B — 2016 — Vol.94 — P.081201(R).
17. Vladimirova M, Cronenberger S, Scalbert D, Kotur M, Dzhioev RI, Ryzhov II, Kozlov GG, Zapasskii VS, Lemaître A, Kavokin KV, Nuclear spin relaxation in n-GaAs: From insulating to metallic regime// Physical Review B — 2017 — Vol.95 — P.125312.
18. Vladimirova M, Cronenberger S, Scalbert D, Ryzhov II, Zapasskii VS, Kozlov GG, Lemaître A, Kavokin KV, Spin temperature concept verified by optical magnetometry of nuclear spins// Physical Review B — 2018 — Vol.97 — P.041301.
19. Mocek R.W., Korenev V.L., Bayer M., Kotur M., Dzhioev R.I., Tolmachev D.O., Cascio G., Kavokin K.V., Suter D. High-efficiency optical pumping of nuclear polarization in a GaAs quantum well// Physical Review B — 2017 — Vol.96 — P.201303.
20. Kotur M., Dzhioev R. I., Vladimirova M., Cherbunin R. V., Sokolov P. S., Yakovlev D. R., Bayer M., Suter D., Kavokin K. V. Spin-lattice relaxation of optically polarized nuclei in p-type GaAs // Physical Review B — 2018 — Vol.97 — P.165206.
21. Sokolov P. S., Petrov M. Yu., Kavokin K. V., Kuznetsova M. S., Verbin S. Yu., Gerlovin I. Ya., Yakovlev D. R., and Bayer M., Subsecond nuclear spin dynamics in n-GaAs// Phys. Rev. B — 2019 — Vol.99 — P.075307.
22. Kavokin, K. V., Koudinov, A. V. Dynamical polarization of nuclear spins by acceptor-bound holes in a zinc-blende semiconductor// Phys. Rev. B — 2013 — Vol.88 — P.235202.

**Структура диссертации:** Диссертация состоит из введения, 6 глав и заключения. Глава 1 представляет собой обзор по магнитным и обменным взаимодействиям, оптической ориентации и спиновой релаксации в

полупроводниках. В главе 2 выводится гамильтониан анизотропного обменного взаимодействия локализованных электронов проводимости в полупроводнике без центра инверсии. В главе 3 рассматривается спиновая релаксация в примесной зоне полупроводника без центра инверсии, предлагается и обосновывается механизм спиновой релаксации за счет анизотропного обменного взаимодействия, приводятся результаты экспериментального исследования спиновой релаксации электронов в n-GaAs с различным уровнем легирования. В главе 4 описываются невозмущающие методы измерения намагниченности ядерной спиновой системы, основанные на лазерной поляриметрии. В главе 5 излагаются результаты исследования термодинамики оптически охлажденной спиновой системы ядер решетки в полупроводниковых микроструктурах. В главе 6 исследуются механизмы отогрева оптически охлажденной спиновой системы ядер за счет взаимодействия с носителями заряда в полупроводниках с различным уровнем и типом легирования.

Полный объем диссертации составляет 121 страницу с 26 рисунками и 2 таблицами. Список литературы содержит 79 наименований.

# **Глава 1. Магнитные и обменные взаимодействия в полупроводниках. Оптическая ориентация и механизмы спиновой релаксации электронов и ядер**

## **1.1. Введение**

Полупроводниковые кристаллы образованы из тех же элементарных частиц, что и весь остальной мир, поэтому основные виды взаимодействия спинов и орбитальных моментов с внешними полями и между собой, актуальные для полупроводников, хорошо известны из атомной физики. Это магнитные Зеемановское и магнитодипольное спин-спиновое взаимодействия, спин-орбитальное взаимодействие, сверхтонкое взаимодействие спинов электронов и ядер, а также немагнитное и единственное принципиально квантовое взаимодействие – обменное. При наличии спинового квадрупольного момента возможно его взаимодействие с градиентами электрического поля.

Весь этот набор взаимодействий демонстрируют и локализованные спиновые моменты в твердых телах – спины ядер решетки и электронные спины внутренних оболочек магнитных атомов, являющихся компонентами решетки или же примесями (за вычетом обменного взаимодействия ядерных спинов, обычно чрезвычайно слабого в силу незначительного перекрытия волновых функций ядер). Тот факт, что взаимодействующие частицы в твердом теле разделены не вакуумом, а средой, составленной из других атомов, приводит к появлению косвенных обменных взаимодействий, имеющих больший радиус действия, чем прямой обмен. Вследствие спин-орбитального взаимодействия и симметрия косвенного обмена меняется, отражая симметрию кристаллического окружения.

В металлах и полупроводниках этот набор дополняется взаимодействиями между спинами делокализованных носителей заряда, их взаимодействиями с локализованными спинами, и косвенными взаимодействиями локализованных спиновых моментов через посредство подвижных носителей заряда. В частности, хорошо известно косвенное обменное взаимодействие Рудермана-Киттеля-Касуи-

Иосиды (РККИ) через электроны на поверхности Ферми, которое может в ряде случаев вызывать магнитное упорядочение локализованных спинов.

Транспортные и оптические свойства полупроводниковых кристаллов и квантово-размерных структур на их основе определяются электронными состояниями вблизи краев наиболее низких по энергии зон проводимости и наивысших валентных зон. Свойства квазичастиц – электронов и дырок – в таких состояниях сильно модифицированы периодическим потенциалом кристалла. Неудивительно, что взаимодействия магнитных моментов зонных носителей заряда между собой, с внешними полями и с локализованными спиновыми моментами отражают специфику структуры и часто сильно отличаются по симметрии от своих аналогов в атомной физике.

Основные спиновые и магнитные взаимодействия в полупроводниках более подробно рассматриваются в следующих шести параграфах данной главы. Последние три параграфа посвящены основным принципам оптической ориентации спинов в полупроводниках и основным механизмам спиновой релаксации электронов и ядер, известным на момент начала исследований по теме данной диссертации.

### 1.2.Зеемановское взаимодействие

Энергия магнитного момента во внешнем магнитном поле равна

$$E_Z = -\vec{\mu} \cdot \vec{B} \quad (1.1)$$

Оператор магнитного момента электрона равен  $\mu_B g_e \hat{S}$ , где  $\mu_B = 9.27 \cdot 10^{-20}$  эрг/Гс - магнетон Бора,  $g_e$  - g-фактор электрона, а  $\hat{S}$  - оператор его спина. Формула для ядерного магнитного момента аналогичная, только вместо магнетона Бора стоит ядерный магнетон  $\mu_B = 5.05 \cdot 10^{-24}$  эрг/Гс, а g-фактор соответствует данному изотопу. В полупроводнике g-фактор носителя заряда часто сильно отличается от g-фактора электрона в вакууме  $g_0 = 2.0023$  вследствие спин-орбитального взаимодействия (см. следующий параграф). Разность энергий собственных

состояний оператора спина с проекциями на внешнее поле, отличающимися на 1, можно записать в виде

$$\Delta E_z = \hbar \omega_L = \hbar \gamma B \quad (1.2)$$

где  $\omega_L$  - частота Ларморовой прецессии поперечных к магнитному полю компонент вектора спина, а  $\gamma$  - гиромагнитное отношение. Для электрона  $\gamma_e = g_e \mu_B / \hbar$ . В таблице 1.1. приведены гиромагнитные отношения для спинов электронов и ядер в арсениде галлия – модельном материале настоящей работы.

Электрон вблизи дна зоны проводимости, $S=1/2$ , $ g_e  \approx 0.44$	$3.87 \cdot 10^6$ рад/сГаусс
Электрон на глубоком центре, $S=1/2$ , $ g_e  \approx 2$	$1.76 \cdot 10^7$ рад/сГаусс
Ядро $^{75}\text{As}$ , $I=3/2$ , естественная распространённость 100%	$4.596 \cdot 10^3$ рад/сГаусс
Ядро $^{69}\text{Ga}$ , $I=3/2$ , естественная распространённость 60.1%	$6.439 \cdot 10^3$ рад/сГаусс
Ядро $^{71}\text{Ga}$ , $I=3/2$ , естественная распространённость 39.9%	$8.181 \cdot 10^3$ рад/сГаусс

Таблица 1.1. Гиромагнитные отношения для спинов электронов и ядер в GaAs.

### 1.3. Магнитодипольное взаимодействие

Энергия магнитного взаимодействия двух магнитных моментов  $\vec{\mu}_1$  и  $\vec{\mu}_2$ , положение которых задается радиус-векторами  $\vec{r}_1$  и  $\vec{r}_2$  соответственно, равна

$$E_{dd} = \frac{\vec{\mu}_1 \cdot \vec{\mu}_2}{r_{12}^3} - 3 \frac{(\vec{\mu}_1 \cdot \vec{r}_{12})(\vec{\mu}_2 \cdot \vec{r}_{12})}{r_{12}^5} \quad (1.3)$$

где  $\vec{r}_{12} = \vec{r}_2 - \vec{r}_1$ . Гамильтониан магнитодипольного взаимодействия двух спинов получается из (1.3) подстановкой соответствующих операторов вместо классических векторов  $\vec{\mu}_1$  и  $\vec{\mu}_2$ .

Оценим характерный масштаб энергий магнитодипольного взаимодействия и его возможный вклад в спиновую динамику. Для двух локализованных на донорах электронов на расстоянии  $r_{12} = 100nm$  (среднее расстояние между донорами при концентрации примеси  $10^{15}cm^{-3}$ ) максимальная величина  $E_{dd}$  составляет примерно  $3 \cdot 10^{-8} \mu eV$ , а соответствующая ей угловая частота  $E_{dd}/\hbar$  равна  $40s^{-1}$ . Для соседних ядер решетки характерная энергия порядка  $10^{-5} \mu eV$ ,  $E_{dd}/\hbar \approx 10^4 s^{-1}$ . Именно магнитодипольное взаимодействие определяет спин-спиновую релаксацию в ядерной системе с характерными временами в доли миллисекунды. Для электронов же магнитодипольным взаимодействием, как правило, можно пренебречь на фоне других взаимодействий.

#### 1.4.Сверхтонкое взаимодействие

Взаимодействие магнитных моментов носителя заряда и ядра в полупроводнике зависит от того, из каких атомных орбиталей составлена волновая функция носителя. Гамильтониан сверхтонкого взаимодействия в атоме имеет вид:

$$\hat{H}_{hf}^{at} = g_0 \mu_B \hbar \gamma_N \vec{I} \cdot \left( \frac{8\pi}{3} \vec{s} \delta(\vec{r}) + \frac{\vec{l}}{r^3} - \frac{\vec{s}}{r^3} + 3 \frac{\vec{r}(\vec{s} \cdot \vec{r})}{r^5} \right) \quad (1.4)$$

Для электронов вблизи  $\Gamma$ -точки зоны проводимости, Блоховские амплитуды которых образованы орбиталями s-типа, при усреднении этого гамильтониана по орбитальной волновой функции в пределах элементарной ячейки остаётся лишь первое слагаемое, отвечающее за контактное взаимодействие Ферми [1]. В результате эффективный гамильтониан сверхтонкого взаимодействия приобретает вид

$$\hat{H}_{hf} = \sum_n v_0 A_n |\Psi(\vec{r}_n)|^2 \quad (1.5)$$

где сумма берётся по всем ядрам,  $v_0$  - объём примитивной ячейки,  $\Psi(\vec{r}_n)$  - огибающая волновой функции электрона, и  $A_n$  - константа сверхтонкого взаимодействия для n-го ядра. В арсениде галлия  $A_{As} = 43.5 \pm 0.9 \mu eV$ ,

$A_{69Ga} = 43.1 \pm 1.6 \mu eV$  и  $A_{71Ga} = 54.8 \pm 2.1 \mu eV$ . Остальные слагаемые в (1.4) важны при вычислении сверхтонкого взаимодействия для дырок [2, 3] и электронов в других экстремумах зоны проводимости [4]. В частности, сверхтонкие константы дырок, имеющих блоховские амплитуды р-типа, оказываются примерно на порядок меньше, чем для электронов в  $\Gamma$ -точке [3].

### 1.5. Спин-орбитальное взаимодействие

Спин-орбитальное взаимодействие обусловлено тем, что при движении частицы в электрическом поле  $\vec{E}$  на нее воздействует магнитное поле, равное

$$\vec{B}_{SO} = \frac{1}{c} [\vec{E} \times \vec{v}], \quad (1.6)$$

где  $\vec{v}$  - скорость частицы. Для электрона это приводит к возникновению добавки в гамильтониан, равной

$$g_e \mu_B \vec{B}_{SO} \cdot \hat{S} \quad (1.7)$$

Эта добавка может быть также получена разложением уравнения Дирака до слагаемых, квадратичных по  $1/c^2$ .

В кристалле электроны испытывают воздействие периодического потенциала, градиент которого представляет собой локальное электрическое поле. Движение электрона в этом поле приводит к возникновению магнитного поля, действующего на спин электрона, однако из-за неоднородности локального поля оно не может быть сведено к простой формуле (1.6). Из-за сложной зависимости кристаллического поля от координат влияние спин-орбитального взаимодействия на свободно движущиеся в кристалле носители заряда проще исследовать не с помощью электродинамической формулы (1.6), а с помощью аналога уравнения Дирака в физике твердого тела – системы уравнений модели Кейна. Учет подмешивания нескольких ближайших зон дает возможность получить в теории и количественно рассчитать все основные проявления спин-орбитального взаимодействия. К таковым можно отнести:

1) Перенормировку g-факторов носителей заряда. Спиновый магнитный момент квазичастиц - электронов проводимости и дырок - во многих, в

особенности узкозонных, полупроводниках несёт значительный вклад орбитального момента электронов составляющих полупроводник атомов. В результате g-фактор может существенно отличаться от 2 по абсолютной величине и иметь как положительный, так и отрицательный знак. В частности, g-фактор электрона в минимуме зоны проводимости в GaAs равен -0.44.

2) Спин-орбитальное расщепление электронных состояний в точках экстремумов зон. В частности, в кубических полупроводниках валентная зона оказывается расщепленной, при равном нулю волновом векторе, на зоны  $\Gamma_8$  (зоны тяжелых и легких дырок, полный момент  $J=3/2$ ) и  $\Gamma_7$  (отщепленная зона, полный момент  $J=1/2$ ). Это обстоятельство делает возможной оптическую ориентацию спинов электронов в зоне проводимости и дырок в валентной зоне при поглощении циркулярно поляризованного света с энергией фотона, не превышающей  $E_g + \Delta$ , где  $E_g$  - ширина запрещенной зоны, а  $\Delta$  - энергия спин-орбитального расщепления (разность энергий вершин зон  $\Gamma_8$  и  $\Gamma_7$ ).

3) Появление нечетных по волновому вектору слагаемых в зонных гамильтонианах кристаллов и низкоразмерных структур без центра инверсии. Такие слагаемые имеют вид [5]:

$$V_{so} = \hbar \vec{\Omega}_{so}(\vec{k}) \cdot \vec{S} \quad (1.8)$$

В случае объёмных полупроводников со структурой цинковой обманки, вектор  $\vec{\Omega}^{so}$ , который можно интерпретировать как эффективное спин-орбитальное поле, аналогичное магнитному, равен

$$\vec{\Omega}_{so}(\vec{k}) = \alpha_{so} \hbar^2 \frac{\vec{k}}{m \sqrt{2mE_g}} \quad (1.9)$$

где  $\kappa_x = k_x(k_y^2 - k_z^2)$ , а две другие компоненты получаются циклической перестановкой индексов [6, 7]. В квантовых ямах вектор  $\vec{\Omega}^{so}$  линейен по волновому вектору в плоскости ямы и содержит вклад, обусловленный асимметрией ямы (structure inversion asymmetry – SIA) [8, 9] и вклад от перенормированного в результате размерного квантования объёмного спин-орбитального поля (bulk inversion asymmetry – BIA) [10]. Как показано в [11], асимметрия квантовой ямы,

вызванная приложенным электрическим полем, вызывает на порядок большее спин-орбитальное поле SIA, чем такая же асимметрия, заданная градиентом состава твёрдого раствора. Это позволяет использовать внешние электроды для управления спин-орбитальными полями.

### 1.6. Квадрупольные взаимодействия

Квадрупольное взаимодействие возникает из-за несферического распределения заряда атомного ядра. Гамильтониан квадрупольного взаимодействия имеет вид [12]:

$$\hat{H}_q = \sum_{j,k} \left( \frac{\partial^2 V}{\partial x_j \partial x_k} \right) Q_{jk} \quad (1.10)$$

где квадрупольный момент

$$Q_{jk} = \frac{eQ}{6I(2I-1)} \left\{ \frac{3}{2} (I_j I_k + I_k I_j) - \delta_{jk} I(I+1) \right\} \quad (1.11)$$

а  $V$  – электростатический потенциал в окрестностях ядра. Таким образом, в результате квадрупольного взаимодействия энергия ядерного спина оказывается зависящей от его ориентации по отношению к осям тензора градиента электрического поля. У ядер со спином  $\frac{1}{2}$  квадрупольные взаимодействия отсутствуют.

Константа  $Q$  различна для разных изотопов. Для ядер, формирующих решётку арсенида галлия,

$$\begin{aligned} Q(As^{75}) &= 0.3 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \\ Q(Ga^{69}) &= 0.23 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \\ Q(Ga^{71}) &= 0.15 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \end{aligned} \quad (1.12)$$

В кубических кристаллах все элементы тензора градиента электрического поля равны нулю. Они возникают при деформации и при внедрении в кристаллическую решётку атомов с другим ионным радиусом (например, в твёрдых растворах [13]). Из-за отсутствия инверсионной симметрии в GaAs и

других полупроводниках со структурой цинковой обманки существует также вклад в локальный градиент электрического поля, линейный по макроскопическому электрическому полю:

$$\frac{\partial^2 V}{\partial x_j \partial x_k} = \beta_Q v_{jk,i} E_i \quad (1.13)$$

где  $v_{jk,i} = v_{kj,i} = 1$ , если  $i \neq j \neq k \neq i$ , и 0 при совпадении любых двух индексов.

Константы  $\beta$  для GaAs были экспериментально определены в [14]:

$$\begin{aligned} \beta_Q(As^{75}) &= (2.0 \pm 0.2) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-1} \\ \beta_Q(Ga^{69}) &= (1.5 \pm 0.2) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-1} \\ \beta_Q(Ga^{71}) &= (1.5 \pm 0.2) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-1} \end{aligned} \quad (1.14)$$

### 1.7. Обменное взаимодействие

Обменное взаимодействие между спинами двух электронов обусловлено антисимметричностью их двухчастичной волновой функции по отношению к перестановке частиц. Если спин-орбитальное взаимодействие не входит в явном виде в гамильтониан взаимодействующих частиц, их волновая функция может быть записана в виде произведения координатной и спиновой части. В результате антисимметричной комбинации спинов (для электронов со спином  $\frac{1}{2}$  это состояние с полным спином  $F=0$ , синглет) соответствует симметричная орбитальная функция, а симметричной комбинации (для электронов со спином  $\frac{1}{2}$  - триплет с  $F=1$ ) – антисимметричная орбитальная функция. Электростатическая энергия пары частиц в симметричном и антисимметричном орбитальном состоянии, вообще говоря, различны. Это приводит к следующему общему виду спинового гамильтониана [15]:

$$\hat{H}_{ex} = -\frac{1}{2} J (1 + 4\vec{s}_1 \cdot \vec{s}_2) = J [1 - (\vec{s}_1 + \vec{s}_2)^2] = \begin{cases} J & F=0 \\ -J & F=1 \end{cases} \quad (1.15)$$

где  $J$  – обменная константа, величина и знак которой определяются видом взаимодействия и орбитальной волновой функции электронов. По порядку

величины  $J$  равна энергии электростатического взаимодействия двух электронов, умноженной на интеграл перекрытия одноэлектронных волновых функций. Для точного вычисления обменной константы необходимо учитывать пространственную корреляцию двух электронов, возникающую из-за их кулоновского взаимодействия [16]. Для обменного взаимодействия электронов в молекуле водорода (атомный аналог взаимодействия двух локализованных на мелких донорах электронов в полупроводнике) такой расчёт был выполнен Горьковым и Питаевским [17, 18] и Херрингом и Фликкером [19], которые получили следующий результат:

$$J = 0.82 \frac{e^2}{\epsilon a_B} \left( \frac{r}{a_B} \right)^{5/2} \exp\left(-\frac{2r}{a_B}\right) \quad (1.16)$$

где  $r$  – расстояние между ядрами двух атомов.

Обменное взаимодействие приводит также к весьма эффективному рассеянию свободных электронов на локализованных со взаимным переворотом спинов. Сечение такого рассеяния при низких температурах и умеренных легированиях, когда длина волны свободного электрона больше Боровского радиуса локализованного электрона, можно рассчитать, воспользовавшись результатами теории рассеяния медленных электронов на атомах водорода [20]. Как и в случае локализованных электронов, чётность координатной части двухчастичной волновой функции различна для синглетного и триплетного спиновых состояний. Соответственно, амплитуды рассеяния для частиц в синглетном и триплетном состоянии различны. Пусть локализованный электрон находится в состоянии со спином вверх, а налетающий свободный электрон – в состоянии со спином вниз. Такое состояние пары электронов может быть представлено в виде суперпозиции синглетного и триплетного состояний:

$$\uparrow\downarrow = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[ \frac{1}{\sqrt{2}} (\uparrow\downarrow - \downarrow\uparrow) + \frac{1}{\sqrt{2}} (\uparrow\downarrow + \downarrow\uparrow) \right] \quad (1.17)$$

Амплитуда состояния пары после рассеяния равна

$$\begin{aligned} \uparrow\downarrow &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left[ \frac{1}{\sqrt{2}} f_s (\uparrow\downarrow - \downarrow\uparrow) + \frac{1}{\sqrt{2}} f_t (\uparrow\downarrow + \downarrow\uparrow) \right] = \\ &= \frac{1}{2} [(f_s + f_t) \uparrow\downarrow + (f_s - f_t) \downarrow\uparrow] \end{aligned} \quad (1.18)$$

где  $f_s$  и  $f_t$  - амплитуды синглетного и триплетного рассеяния. В пределе малого волнового вектора свободного электрона  $k$  обе эти амплитуды не зависят от угла рассеяния и равны [15]:

$$\begin{aligned} f_s &= k^{-1} \sin(\eta_{0s}) e^{i\eta_{0s}} \\ f_t &= k^{-1} \sin(\eta_{0t}) e^{i\eta_{0t}} \end{aligned} \quad (1.19)$$

где  $\eta_{0s}$  и  $\eta_{0t}$  - соответствующие фазовые сдвиги нулевого порядка. Сечение рассеяния с переворотом спина равно

$$\sigma_{sf}(k) = \frac{4\pi}{k^2} |f_s - f_t|^2 = \frac{\pi}{k^2} \sin^2(\eta_{0s} - \eta_{0t}) \quad (1.20)$$

Зависимости  $\eta_{0s}$  и  $\eta_{0t}$  от  $ka_B$ , полученные численным расчётом для рассеяния электрона на атоме водорода, представлены на рисунке 1 в статье [20]. Используя эти кривые, можно представить зависимость сечения спин-флип рассеяния от волнового вектора аппроксимационной формулой

$$\sigma_{sf}(k) \approx \frac{20.6\pi a_B^2}{1 + (3.9ka_B)^3} \quad (1.21)$$

воспроизводящей результаты численного расчёта с точностью не хуже 2% при  $ka_B \leq 0.7$  [21].

### 1.8. Основные принципы оптической ориентации спинов в полупроводниках

Основные принципы оптической ориентации спинов в полупроводниках изложены в монографиях [22] и [23]. Здесь мы даём их краткий обзор с упором на те разделы, которые будут важны для понимания оригинальной части диссертации.

Оптическая ориентация спинов фотовозбуждённых электронов в прямозонном полупроводнике возникает при поглощении циркулярно поляризованного света с энергией фотона  $h\nu$ , удовлетворяющей условию

$$E_g < h\nu < E_g + \Delta \quad (1.22)$$

где  $\Delta$  - энергия спин-орбитального расщепления валентной зоны. В случае объёмного полупроводника со структурой цинковой обманки поглощение фотона,

поляризованного по правому кругу, приводит к рождению электрона с направлением спина против волнового вектора света с вероятностью, в три раза превышающей вероятность рождения электрона с противоположным спином. В результате фотовозбуждённые электроны имеют среднюю спиновую поляризацию в 50%. Фотовозбуждённые дырки также поляризованы по спину, но из-за сильного спин-орбитального взаимодействия в валентной зоне их спиновая поляризация релаксирует за очень короткое время, порядка времени релаксации импульса.

В полупроводнике  $p$ -типа время существования спиновой поляризации электронов,  $T_s$ , определяется кратчайшим из двух релаксационных времён – времени жизни  $\tau$  (определяемым рекомбинацией с основными носителями – дырками) и времени спиновой релаксации  $\tau_s$ :

$$T_s^{-1} = \tau_s^{-1} + \tau^{-1} \quad (1.23)$$

При непрерывном оптическом возбуждении спиновая поляризация электронов не зависит от его интенсивности и пропорциональна отношению времён  $T_s$  и  $\tau$ .

В полупроводниках  $n$ -типа спиновая поляризация фотовозбуждённых свободных электронов передаётся резидентным электронам за счёт обменного рассеяния [24]. Аналогично происходит спиновая ориентация резидентных электронов при оптическом возбуждении спин-поляризованных экситонов. Оценку времени выравнивания среднего спина свободных электронов со средним спином локализованных в GaAs  $n$ -типа при температуре жидкого гелия легко получить, воспользовавшись формулой (1.21) для сечения рассеяния [21]. Оно составляет менее 100 пикосекунд уже при концентрации доноров  $n_D = 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  и далее спадает обратно пропорционально  $n_D$ . Эта оценка близка к полученной ранее Паже [24]. Поскольку времена спиновой релаксации в слаболегированных полупроводниках  $n$ -типа типично превышают 100 пикосекунд, в условиях оптической ориентации электроны в полупроводниках  $n$ -типа обычно составляют ансамбль с единой спиновой поляризацией. При импульсной накачке фотовозбуждённые дырки рекомбинируют за десятки или сотни пикосекунд после

окончания импульса, и после этого время жизни резидентных электронов обращается в бесконечность. В таких условиях время жизни электронной спиновой поляризации совпадает со временем спиновой релаксации. При непрерывном возбуждении время жизни электронов обратно пропорционально концентрации фотовозбуждённых дырок, и поэтому время жизни электронной спиновой поляризации уменьшается с ростом интенсивности накачки.

Динамическая поляризация ядер поляризованными по спину электронами происходит за счёт слагаемых вида  $I_+S_- + I_-S_+$  в гамильтониане сверхтонкого взаимодействия. Эти слагаемые приводят к взаимному перевороту спина электрона и ядра при сохранении полного спинового углового момента электронно-ядерной системы [12]. Существуют несколько механизмов динамической поляризации ядер при оптической ориентации в полупроводниках (см. подробнее [1, 25]). Наиболее распространённый и просто реализуемый – эффект Оверхаузера, основанный на стремлении выведенной накачкой из равновесия электронной спиновой системы к равновесному состоянию через передачу спинового углового момента ядрам. При этом, теоретически, спиновая поляризация ядер связана с неравновесной спиновой поляризацией электронов соотношением

$$\frac{\langle I \rangle}{I} = \frac{I+1}{S+1} \cdot \frac{\langle S \rangle - \langle S_T \rangle}{S} \quad (1.24)$$

где  $\langle S_T \rangle$  - равновесное значение среднего спина электронов. В GaAs все ядра имеют спин 3/2, поэтому коэффициент пропорциональности в (1.24) равен 5/3. Практически, поляризация ядер обычно оказывается ниже из-за различных релаксационных процессов.

В нулевом внешнем магнитном поле неравновесная спиновая поляризация ядер релаксирует за время  $T_2 \sim 10^{-4} s$ , определяемое диполь-дипольным взаимодействием между спинами близко расположенных ядер. При наличии внешнего поля ядерная спиновая поляризация имеет два времени релаксации,  $T_2$  и  $T_1$ . Время  $T_1$  характеризует релаксацию компоненты ядерного спина вдоль внешнего поля; обычно оно много длиннее  $T_2$ . Эффективность динамической

поляризации ядер при оптической ориентации обычно недостаточна для достижения заметной поляризации ядерных спинов, характеризующихся временем релаксации  $T_2$ . Поэтому оптическая ориентация ядерных спинов требует приложения внешнего поля. При этом создаётся средний спин ядер, параллельный или антипараллельный внешнему полю и пропорциональный проекции неравновесного спина электронов на это поле. Вследствие сверхтонкого взаимодействия поляризованные по спину ядра создают эффективное магнитное поле – поле Оверхаузера – действующее на электронные спины и направленное также параллельно или антипараллельно внешнему магнитному полю. Поле Оверхаузера пропорционально среднему спину ядер:

$$B_N = \frac{\sum x_n A_n \langle I_n \rangle}{\mu_B g_e} \quad (1.25)$$

где  $n$  нумерует различные изотопы,  $x_n$  - содержание данного изотопа в кристалле. Из-за отрицательного  $g$ -фактора электронов и положительных сверхтонких констант для всех изотопов, в арсениде галлия поле Оверхаузера противонаправлено среднему спину ядер. Его максимальная величина при полной поляризации всех ядерных спинов составляет примерно 5.3 Тесла.

### 1.9. Механизмы спиновой релаксации электронов в полупроводниках

К началу исследований, вошедших в диссертацию, спиновая релаксация электронов при оптической ориентации в кубических прямозонных полупроводниках была достаточно хорошо изучена в материалах  $p$ -типа. Обзор этих исследований, а также подробное изложение теории спин-орбитальной релаксации свободных электронов (механизмы Эллиота-Яфета и Дьяконова-Переля) и релаксации электронов при рассеянии на дырках (механизм Бира-Аронова-Пикуса), даны Титковым и Пикусом в главе 3 монографии «Оптическая ориентация» [7]. Механизм релаксации электронного спина на ядерных спиновых флуктуациях теоретически рассмотрен Дьяконовым и Перелем [26, 1].

Механизм Эллиота-Яфета (переворот спина электрона в момент рассеяния на примеси или фононе за счёт спин-орбитального взаимодействия) оказывается

существенным только в узкозонных полупроводниках (например, InSb) с сильным спин-орбитальным взаимодействием. Также он бывает важен в сильных магнитных полях, когда другие механизмы релаксации подавлены. Эта ситуация типична для экспериментов по классическому ЭПР, но не для оптической ориентации.

Механизм Дьяконова-Переля (ДП) [27, 7] обусловлен прецессией электронного спина в эффективном спин-орбитальном поле (см. формулу (1.8)), возникающем при его движении в кристалле или низкоразмерной структуре без центра инверсии. В случае частых столкновений скорость релаксации дается формулой динамического усреднения:

$$\tau_s^{-1} \sim \Omega_{SO}^2 \tau_p \quad (1.26)$$

где  $\tau_p$  - время импульсной релаксации. Механизм ДП определяет скорость спиновой релаксации свободных электронов в большинстве случаев, за исключением сильно легированных полупроводников р-типа.

Механизм Бира-Аронова-Пикуса обусловлен обменным рассеянием электронов на дырках (свободных или связанных на акцепторах). Скорость релаксации пропорциональна концентрации дырок; соответственно, этот механизм доминирует в сильнолегированных полупроводниках р-типа.

Рассеяние на ядерных спиновых флуктуациях не вносит существенного вклада в спиновую релаксацию свободных электронов [1, 2, 28]. Напротив, для локализованных электронов этот механизм весьма эффективен. Как и в механизме ДП, релаксация обусловлена прецессией электронного спина в эффективных магнитных полях, созданных случайными конфигурациями ядерных спинов, связанных сверхтонким взаимодействием с локализованным электроном. В случае локализации электрона в квантовой точке при низкой температуре, электронный спин взаимодействует со статической флуктуацией ядерных спинов, и его динамика сводится к прецессии в поле Оверхаузера  $B_N$ , созданном этой флуктуацией. Такой режим теоретически рассмотрен Меркуловым и др. [29], и наблюдался методом спектроскопии временного разрешения в работе [30]. В среднем по ансамблю квантовых точек прецессия в случайных полях приводит к

падению исходной поляризации электронов до 1/3 от исходной величины. Приложение продольного магнитного поля, превышающего характерное поле ядерной флуктуации, восстанавливает исходную поляризацию электронов.

При коротком времени корреляции спина локализованного электрона  $\tau_c$  (обусловленном, например, перескоком электрона между различными центрами локализации) спиновая релаксация происходит в режиме динамического усреднения: спиновая поляризация спадает экспоненциально со временем затухания  $\tau_s^{-1} \sim \langle B_{Nf}^2 \rangle \tau_c$  [26]. Подробно этот режим рассмотрен в главе 3. В работе [31] экспериментально реализован контролируемый переход между режимами длинного и короткого времён корреляции: время корреляции изменялось регулировкой концентрации свободных электронов в структуре, укорачивавших  $\tau_c$  локализованных электронов за счёт обменного рассеяния.

### 1.10. Механизмы спиновой релаксации ядер в полупроводниках

Как упоминалось выше, ядерная спиновая система характеризуется двумя временами релаксации,  $T_1$  и  $T_2$ . Время спин-спиновой релаксации  $T_2$  характеризует релаксацию неравновесного углового момента за счёт анизотропных спин-спиновых взаимодействий (в основном, диполь-дипольного). В магнитных полях, много больших локальных полей соседних ядер, за это время затухают поперечные к магнитному полю компоненты среднего ядерного спина, осциллирующие на Ларморовой частоте. Для большинства твёрдых тел это время попадает в диапазон  $10^{-5} - 10^{-2}$  секунды; для арсенида галлия и других полупроводников А<sup>III</sup>В<sup>V</sup>  $T_2 \sim 10^{-4}$  секунды.

Время спин-решёточной релаксации  $T_1$  характеризует энергетическую релаксацию ядерной спиновой системы. В сильном магнитном поле основной вклад в энергию ядерных спинов вносит Зеемановское взаимодействие, поэтому  $T_1$  параметризует затухание компоненты ядерной намагниченности вдоль внешнего магнитного поля. В отличие от  $T_2$ ,  $T_1$  имеет очень широкий диапазон значений, от миллисекунд до суток. В твёрдых телах при достаточно низких

температурах, как правило, выполняется условие  $T_1 \gg T_2$ .  $T_1$  для многих полупроводников было измерено в сильных магнитных полях методами ядерного магнитного резонанса (ЯМР) [12]. В этих условиях оно определяется квадрупольным взаимодействием с фононами или, в сильнолегированных полупроводниках, механизмом Корринги – спин-флип рассеянием электронов на поверхности Ферми на ядерных спиновых флуктуациях. Оптическая ориентация позволяет исследовать спин-решёточную релаксацию в полупроводниках в области более слабых магнитных полей, в том числе в полях, меньших локального поля спин-спиновых взаимодействий. Паже выполнил такие исследования в слаболегированном арсениде галлия методом оптически детектируемого ЯМР в магнитном поле 3 кГс, всё ещё значительно превышавшем локальные поля [32]. В качестве основных механизмов спин-решёточной релаксации им были определены сверхтонкое взаимодействие с локализованными на донорах электронами для ядер вблизи донорных центров, и спиновая диффузия к донорам в оставшемся объёме кристалла. В работе [33] был предложен также механизм квадрупольной релаксации ядер вблизи донорного центра за счёт флуктуации зарядового состояния донора в результате захвата и рекомбинации электронов в условиях оптического возбуждения. К началу исследований, вошедших в диссертацию, о спин-решёточной релаксации ядер в ещё более слабых магнитных полях в полупроводниках  $A^{III}B^V$  и  $A^{II}B^{VI}$  не было известно практически ничего.

*Данная глава носит, в основном, обзорный характер. Часть приведённых сведений основана на работах автора [11,21,25,30].*

## Глава 2. Анизотропное обменное взаимодействие локализованных электронов проводимости в полупроводниковых кристаллах и структурах без центра инверсии

Обменное взаимодействие двух локализованных электронов, принадлежащих к зоне проводимости (например, связанных на мелких донорах) долгое время считалось изотропным, и описывалось спиновым гамильтонианом Гейзенберга:

$$\hat{H}_{ex} = -2J(\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2) \quad (2.1)$$

где  $J$  – обменный интеграл, определяемый огибающими волновых функций локализованных состояний.

Однако в случае кристаллов или структур, не обладающих центром инверсии, формула (2.1) оказывается неверной. Причина этому – в нечётных по волновому вектору слагаемых в гамильтониане зоны проводимости, возникающих в таких структурах в результате спин-орбитального взаимодействия (см. главу 1, формула (1.8)). Такие слагаемые приводят к возникновению эффективного магнитного поля  $\vec{\Omega}_{so}(\vec{k})$  (1.9), действующего на спин электрона при его движении. В результате, при перемещении электрона из точки А в точку В его спин поворачивается на некоторый угол, а при перемещении с той же скоростью из точки В в точку А – на такой же по абсолютной величине угол, но в противоположную сторону. То же самое происходит и при туннелировании электрона между двумя потенциальными ямами. Рассмотрим два электрона, локализованных в одинаковых понижениях потенциального рельефа – например, на двух близко расположенных донорных центрах или в паре туннельно связанных квантовых точек. В силу статистики Ферми, двухчастичная волновая функция стационарного состояния при перестановке частиц должна переходить в саму себя с противоположным знаком. Как известно, в случае электронов в вакууме этому требованию удовлетворяют состояния либо с параллельными, либо с антипараллельными спинами двух электронов (при различной чётности орбитальной волновой функции). Именно эти состояния (триплетное и синглетное) дают уровни энергии пары электронов, а расщепление между этими уровнями, обусловленное кулоновским взаимодействием, определяет величину

обменного интеграла  $J$ . В случае же электронов-квазичастиц в кристалле с нечётными по  $k$  слагаемыми в эффективном гамильтониане, направление спина каждого из электронов меняется при перемещении его в соседнюю потенциальную яму. Поэтому стационарными двухчастичными состояниями будут такие, для которых спин одного электрона параллелен или антипараллелен спину другого электрона, перенесённого в ту потенциальную яму, где находится первый электрон. Спиновый гамильтониан, для которого такие состояния являются собственными, получается из гамильтониана Гайзенберга (2.1) поворотом первого и второго спинов на некоторый угол  $\gamma/2$  в противоположные стороны вокруг направления спин-орбитального поля  $\vec{\Omega}_{so}(\vec{k}_{12})$ , которое возникло бы при движении электрона по прямой от одной из потенциальных ям к другой [34]:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{ex}^{SO} &= -2J(\vec{S}_1^{\gamma/2} \cdot \vec{S}_2^{-\gamma/2}) = \\ &= -2J\left[(\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2)\cos\gamma + (\vec{d} \cdot \vec{S}_1)(\vec{d} \cdot \vec{S}_2)(1 - \cos\gamma) + \vec{d} \cdot [\vec{S}_1 \times \vec{S}_2]\sin\gamma\right] \end{aligned} \quad (2.2)$$

где  $\vec{d} = \vec{\Omega}_{so}(\vec{k}_{12}) / |\vec{\Omega}_{so}(\vec{k}_{12})|$ .

Он содержит три слагаемых. Первое – обычное изотропное взаимодействие. Второе имеет симметрию псевдодипольного взаимодействия, и третье – взаимодействия Дзялошинского-Мория [35, 36]. Заметим, что спектр гамильтониана (2.2) сохраняет синглет-триплетную структуру, но соответствующие этим группам уровней стационарные состояния уже не являются собственными состояниями полного спина двух электронов. Таким образом, в отличие от обычного скалярного обменного взаимодействия, обменное взаимодействие в структурах без центра инверсии не сохраняет полный угловой момент взаимодействующих квазичастиц.

Величину угла  $\gamma$  можно найти в пределе больших расстояний между центрами локализации, используя асимптотику волновой функции локализованного электрона [21].

Гамильтониан пары локализованных электронов имеет следующий вид

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{SO}, \quad (2.3)$$

где

$$\hat{H}_0 = \frac{\hbar^2}{2m} k_1^2 + \frac{\hbar^2}{2m} k_2^2 + V(\vec{r}_1) + V(\vec{r}_2) + U_C(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \quad (2.4)$$

$$\hat{H}_{SO} = \hbar \vec{\Omega}_{SO}(\vec{k}_1) \cdot \hat{S}_1 + \hbar \vec{\Omega}_{SO}(\vec{k}_2) \cdot \hat{S}_2 \quad (2.5)$$

Здесь  $U_C(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)$  - оператор кулоновского взаимодействия между электронами,  $V(\vec{r})$  - не зависящий от спина потенциал локализации.

Ввиду малости спин-орбитальных слагаемых, они практически не сказываются на энергии связи и поведении волновой функции электрона вблизи центра локализации. Однако асимптотическое поведение волновой функции серьезно меняется. Поведение волновой функции на больших расстояниях от центра, где локализирующий потенциал близок к нулю, можно получить в квазиклассическом приближении [37]. Волновая функция на расстоянии от центра, большем некоторого (произвольного)  $r_0$  приближенно записывается как

$$\Psi \propto \exp\left(\frac{iS(\vec{r})}{\hbar}\right), \quad (2.6)$$

где действие  $S(\vec{r}) = \hbar \int_{r_0}^r \vec{k} d\vec{r}'$ , интеграл берется вдоль прямолинейной траектории, исходящей из центра, а волновой вектор находится из условия

$$\frac{(\hbar k)^2}{2m} + \hbar \vec{\Omega}_{SO}(\vec{k}) \cdot \vec{S} = E - U(\vec{r}) \quad (2.7)$$

На больших расстояниях от центра можно пренебречь потенциальной энергией  $U(\vec{r})$ . Кроме того, используя малость спин-орбитальных членов, можно найти  $k$  методом последовательных приближений:  $k = k_0 + \Delta k$ , где

$k_0 = \sqrt{\frac{2m(E - U(r))}{\hbar^2}} \approx i \sqrt{\frac{2mE_B}{\hbar^2}}$ ,  $E_B$  - энергия связи электрона. Спин-орбитальная

поправка  $\Delta k$  находится из условия  $\frac{\hbar^2 k_0 \Delta k}{m} + \hbar \vec{\Omega}_{SO}(\vec{k}_0) \cdot \vec{S} = 0$ , что дает

$$\Delta k = \frac{m \vec{\Omega}_{SO}(\vec{k}_0) \cdot \vec{S}}{\hbar k_0}. \text{ Поскольку } \vec{\Omega}_{SO} \text{ - нечетная функция волнового вектора, } \Delta k$$

вещественна. Окончательно получаем

$$\Psi \propto \exp\left(-\sqrt{\frac{2mE_B}{\hbar^2}} r\right) \exp\left(i \frac{m \vec{\Omega}_{SO}\left(\sqrt{\frac{2mE_B}{\hbar^2}} \frac{\vec{r}}{r}\right) \cdot \vec{S}}{\sqrt{2mE_B}} r\right) \quad (2.8)$$

Спин-зависимый множитель в этом выражении имеет вид оператора конечного вращения для спина  $S$ . Поэтому, если состояние локализованного электрона таково, что вблизи центра его спин имеет некоторое определенное направление (его проекция на некоторую ось равна  $1/2$ ), то в точке, смещённой от центра на вектор  $\vec{r}$ , его спин будет повернут на угол

$$\gamma(\vec{r}) = \frac{m \Omega_{SO}\left(\sqrt{\frac{2mE_B}{\hbar^2}} \frac{\vec{r}}{r}\right) r}{\sqrt{2mE_B}} \quad (2.9)$$

вокруг направления спин-орбитального поля. Подставив в (2.9) в качестве  $r$  расстояние между центрами локализации  $r_{12}$ , получаем значение угла  $\gamma$  в формуле (2.2).

В случае линейных по волновому вектору спин-орбитальных слагаемых, характерном для квазидвумерных систем, можно получить аналитическое выражение для угла  $\gamma$  при произвольном расстоянии между центрами локализации [38], при выполнении дополнительного условия, что локализирующий потенциал каждого из центров симметричен по отношению к инверсии в плоскости, перпендикулярной прямой, соединяющей центры.

В этом случае спин-орбитальные слагаемые в гамильтониане можно представить в виде:

$$\hat{H}_{SO} = \sum_{\eta, \xi} A_{\eta\xi} (k_{1\xi} \hat{S}_{1\eta} + k_{2\xi} \hat{S}_{2\eta}) \quad (2.10)$$

где матрица  $A_{n\xi}$  определяется свойствами структуры (в том числе относительным вкладом объёмного (BIA) или структурного (SIA) нарушения инверсионной симметрии).

Обозначим за  $X$  ось, соединяющую центры локализации в плоскости структуры  $XY$ . Поворот спина электрона при его движении от одного центра к другому, обсуждавшийся выше, задаётся унитарным оператором

$$\hat{T} = \exp\left(i \sum_{\alpha} P_{\alpha} (S_{1\alpha} x_1 + S_{2\alpha} x_2)\right) \quad (2.11)$$

Легко проверить, что при воздействии этим оператором вращения на гамильтониан (2.3) спин-орбитальные слагаемые вида  $\sum_{\eta} A_{\eta x} (k_{1x} S_{1\eta} + k_{2x} S_{2\eta})$

исчезают, если выбрать матрицу  $P_{\alpha}$  в виде  $P_{\alpha} = \frac{2m}{\hbar^2} A_{\alpha}$ :

$$\hat{T} \hat{H} \hat{T}^{-1} = \hat{H}_0 - \frac{m}{\hbar^2} \sum_{\alpha} A_{\alpha}^2 + \sum_{\eta} A_{\eta y} (k_{1y} S'_{1\eta} + k_{2y} S'_{2\eta}) \quad (2.12)$$

где  $S'_{n\eta} = \hat{T} S_{n\eta} \hat{T}^{-1}$ .

Поскольку матричные элементы оператора  $k_y = -i \frac{\partial}{\partial y}$  на собственных функциях основного состояния  $\hat{H}_0$  равны нулю в силу симметрии локализуемого потенциала, они не влияют на обменное взаимодействие. Таким образом, переход в «скрученную» систему координат, задаваемый унитарным оператором  $\hat{T}$ , сводит задачу к обычному обменному взаимодействию локализованных электронов. Переход в лабораторную систему координат приводит к гамильтониану (2.2) с углом  $\gamma$ , равным

$$\gamma = \frac{2m}{\hbar^2} \sqrt{\sum_{\eta} A_{\eta x}^2} r_{12} \quad (2.13)$$

В кубических кристаллах спин-орбитальное поле пропорционально третьей степени волнового вектора:

$$\vec{\Omega}_{so}(\vec{k}) = \alpha_{so} \hbar^2 \frac{\vec{k}}{m \sqrt{2mE_g}} \quad (2.14)$$

где  $\alpha_{so}$  - безразмерная константа, а компоненты вектора  $\vec{k}$  задаются выражением

$$\kappa_x = k_x (k_y^2 - k_z^2) \quad (2.15)$$

(две другие компоненты получаются циклической перестановкой индексов).

Подставив эти выражения в формулу (12.9), получаем для угла поворота

$$\gamma(\vec{r}) = \alpha_{SO} \sqrt{\frac{E_B}{E_g}} \frac{r}{a_B} |\vec{\kappa}_r| / r^3 \quad (2.16)$$

где  $\vec{\kappa}_r$  получается из (2.15) заменой компонент волнового вектора соответствующими пространственными координатами, а  $a_B = (\sqrt{2mE_B} / \hbar^2)^{-1}$ . В случае кулоновских центров (например, мелких доноров) это боровский радиус электрона.

### Основные результаты Главы 2:

1. Теоретически показано, что обменное взаимодействие локализованных электронов проводимости в полупроводниках и полупроводниковых структурах без центра инверсии анизотропно.
2. Гамильтониан взаимодействия имеет вид скалярного произведения спинов, повернутых друг относительно друга на угол, возрастающий с расстоянием между центрами локализации.
3. В системах с линейными по волновому вектору спин-орбитальными слагаемыми этот угол прямо пропорционален расстоянию при любом расстоянии между центрами.
4. В остальных случаях пропорциональность расстоянию справедлива асимптотически, при больших (много больших радиуса локализации электрона) расстояниях между центрами.

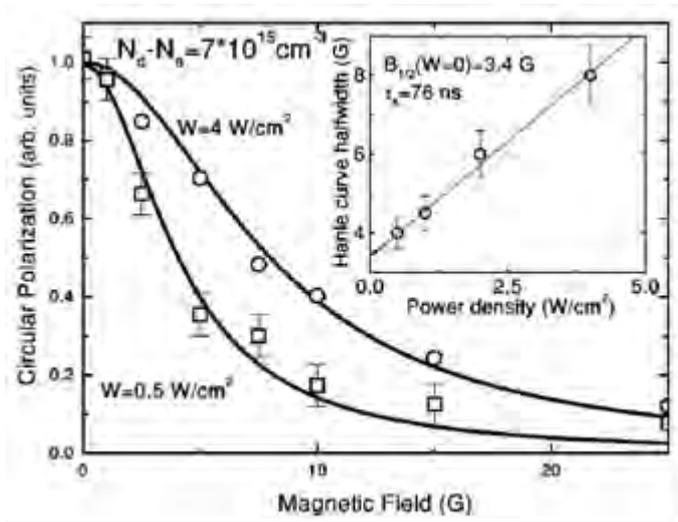
*Исследования, составившие содержание данной главы, опубликованы в работах [21, 34, 38].*

### **Глава 3. Спиновая релаксация электронов в полупроводниках n-типа при низких температурах**

С развитием исследований по полупроводниковой спинтронике в 1990-е годы возник интерес к полупроводниковым системам с долгими временами жизни неравновесных спиновых состояний, которые считались необходимыми для работы, в частности, спиновых транзисторов. В наиболее удобных с точки зрения технологии гетероструктур прямозонных полупроводниках  $A^{III}B^V$  и  $A^{II}B^{VI}$  времена спиновой релаксации обычно достаточно короткие (меньше или порядка наносекунды). Однако, как было обнаружено в работах [39, 40], в арсениде галлия n-типа с концентрацией доноров вблизи  $10^{16} \text{ см}^{-3}$  эти времена могут быть значительно длиннее, порядка ста наносекунд. Возник вопрос, что лимитирует время жизни неравновесного спина в полупроводниках n-типа, и каких величин оно может достигать [41]. Этот вопрос был исследован в работах автора, на которых основана данная глава.

#### **3.1. Экспериментальные исследования спиновой релаксации электронов при низких температурах в GaAs n-типа в слабых магнитных полях.**

Для экспериментального исследования зависимости времени электронной спиновой релаксации в полупроводниках n-типа от концентрации доноров [42] был выбран, в качестве модельного объекта, арсенид галлия. Оптическая ориентация электронных спинов в этом материале была достаточно хорошо исследована ранее. В качестве измерительного инструмента использовался эффект Ханле – деполяризация люминесценции поперечным магнитным полем. Как известно [1], полуширина кривой Ханле в полупроводнике n-типа растёт с мощностью возбуждающего света, следуя линейному закону (Рис. 3.1). Отсечка линейной зависимости при стремлении мощности накачки к нулю даёт время спиновой релаксации резидентных электронов, в соответствии с соотношением:



**Рисунок 3.1** Кривая Ханле и зависимость её полуширины от интенсивности накачки в объёмном образце арсенида галлия с концентрацией доноров  $n_D = 7 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$

$$\frac{1}{\tau_s} = \frac{\mu_B g}{\hbar} B_{1/2}(P \rightarrow 0) \quad (3.1)$$

Были исследованы 16 образцов, содержащих объёмные слои n-GaAs различной толщины, выращенные методами молекулярно-пучковой, жидкостной и газофазной эпитаксии. Диапазон концентраций доноров простирался от  $1 \cdot 10^{14}$  до  $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . Для образцов с концентрациями от  $1 \cdot 10^{14}$  до  $4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  также измерялись кривые восстановления поляризации люминесценции в продольном поле. Это позволило оценить время корреляции спина электрона, локализованного на доноре [1], из соотношения

$$\frac{1}{\tau_c} = \frac{\mu_B g}{\hbar} B_R \quad (3.2)$$

где  $B_R$  - магнитное поле, в котором поляризация возрастает в два раза за счёт подавления спиновой релаксации. Все измерения выполнялись при модуляции циркулярной поляризации возбуждающего света фотоупругим модулятором на частоте 26.6 кГц, чтобы избежать влияния динамической поляризации ядер и равновесной поляризации электронных спинов в приложенном постоянном магнитном поле. Измерения выполнялись при температурах 4.2 и 2К.

Результаты измерений времени спиновой релаксации  $\tau_s$  представлены на Рис.3.2 незаполненными кружками (чтобы не загромождать график, показаны только данные, полученные при 4.2К; результаты при 2К отличаются незначительно). Они позволяют выделить три режима, отличающиеся зависимостью времени спиновой релаксации  $\tau_s$  от концентрации доноров  $n_D$ . При низких концентрациях ( $1 \cdot 10^{14} \div 2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ )  $\tau_s$  быстро растёт с увеличением  $n_D$  (режим 1). При концентрациях в диапазоне  $2 \cdot 10^{15} \div 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$  рост  $\tau_s$  останавливается, сменяясь медленным снижением (режим 2). Наконец, при  $n_D > 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ , где полупроводник становится вырожденным (металлическая фаза), наблюдается монотонное снижение  $\tau_s$ , приблизительно обратно пропорционально квадрату концентрации доноров (режим 3).

На Рис.3.2 в этой области наши измерения дополнены данными из работы [40], позволяющими проследить эту тенденцию вплоть до  $n_D > 5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ . Максимальные значения  $\tau_s$ , около 200 нс, измерены при  $n_D = 2 \div 4 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$  и при  $n_D = 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ . На Рисунке 3.2 приведены для сравнения также данные недавних измерений, выполненных В.В.Белых [44] (показаны синими косыми крестами) и J. G. Lonnemann и др. [45] (прямые коричневые кресты).

Время корреляции  $\tau_c$  (треугольники) демонстрирует быстрое сокращение с ростом  $n_D$ , по крайней мере, до  $4 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ . Выше этой концентрации  $\tau_c$  становится настолько коротким, что для наблюдения нарастания поляризации приходится прилагать сильные магнитные поля (больше 1Т), которые вызывают значительные сдвиги линий люминесценции, что не позволяет корректно интерпретировать результаты экспериментов.

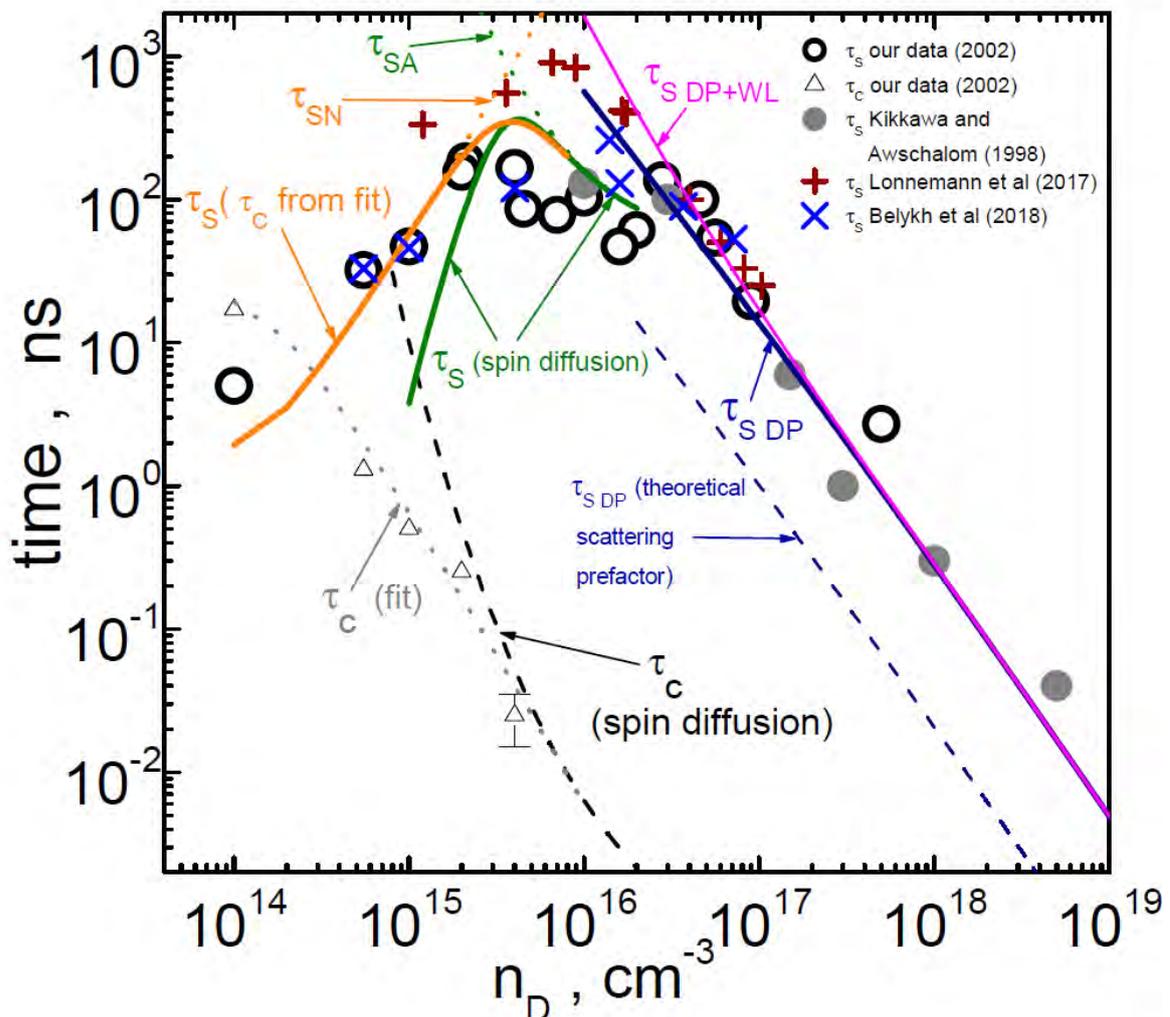


Рисунок 3.2 Зависимость времен спиновой релаксации и корреляции от концентрации доноров в n-GaAs при низких температурах (2-6.5K). Символы: экспериментальные данные, полученные автором (незаполненные кружки ( $\tau_s$ ) и треугольники ( $\tau_c$ )) и взятые из литературы. Линии: серый пунктир – аппроксимация измеренной зависимости времени корреляции  $\tau_c$  от концентрации доноров; серая штриховая – теоретическая зависимость  $\tau_c$  в модели обменной спиновой диффузии; оранжевая сплошная -  $\tau_s$ , рассчитанная по измеренным временам корреляции с учётом релаксации на ядрах и анизотропного обмена; оранжевая пунктирная – вклад сверхтонкого взаимодействия ( $\tau_{SN}$ ); зелёная сплошная – теоретическая зависимость, учитывающая сверхтонкую и спин-орбитальную релаксацию при обменной спиновой диффузии; зелёная пунктирная – вклад анизотропного обмена ( $\tau_{SA}$ ). Тёмно-синяя сплошная линия показывает теоретическую зависимость времени релаксации по механизму Дьяконова-Переля при рассеянии на заряженных примесях, при этом префактор времени релаксации 3-й угловой гармоники распределения по импульсам ( $\tau_3$ ) взят из сопоставления с  $\tau_3$ , экспериментально измеренной в работе [43] для  $n_D = 3.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . Тёмно-синяя штриховая – то же с теоретически рассчитанным префактором. Сиреневая линия – механизм Дьяконова-Переля с учётом эффекта слабой локализации [43].

Качественная интерпретация этих трёх режимов спиновой релаксации электронов следующая: режим 1 – релаксация за счёт сверхтонкого взаимодействия со спинами ядер решётки; режим 2 – релаксация за счёт анизотропного обменного взаимодействия локализованных на донорах электронов друг с другом; режим 3 – релаксация свободных электронов на поверхности Ферми по механизму Дьяконова-Переля. Переход от режима 1 к режиму 2 в диэлектрической фазе происходит по мере сокращения времени корреляции за счёт ускорения флип-флоп переходов между спинами электронов, локализованных на соседних донорах, в результате их обменного взаимодействия. При этом, с одной стороны, из-за динамического усреднения флуктуирующих ядерных полей ослабляется связь электронных и ядерных спинов; с другой стороны, частые флип-флоп переходы приводят к потере спиновой ориентации за счёт слабой анизотропной части обменного взаимодействия. Переход от режима 2 к режиму 3 происходит в результате перехода Мотта от диэлектрической к металлической проводимости с делокализацией электронов и формированием поверхности Ферми. Теоретическое рассмотрение спиновой релаксации в этих трёх режимах составляет содержание следующего раздела.

## 3.2. Теоретическое описание спиновой релаксации электронов при низких температурах в GaAs и подобных ему полупроводниках n-типа

### 3.2.1. Релаксация в металлической фазе (механизм Дьяконова-Переля)

При энергии Ферми  $E_F \gg k_B T$  неравновесный спин электронов аккумулируется в узкой полосе энергий вблизи поверхности Ферми, поэтому энергию электрона можно принять равной  $E_F = (3\pi^2)^{2/3} \hbar^2 n_e^{2/3} / 2m_e$ , где  $n_e$  и  $m_e$  - концентрация и эффективная масса свободных электронов. Время спиновой релаксации по механизму Дьяконова-Переля равно [27, 7]:

$$\tau_S^{DP} = \frac{105}{32} \alpha^{-2} \frac{\hbar^2 E_g}{E_F^3 \tau_3} = \frac{105}{32} \alpha^{-2} \frac{\hbar^2 E_g}{(3^{2/3} \pi^{4/3} \hbar^2 n_e^{2/3} / 2m_e)^3 \tau_3} = \frac{35}{12\pi^4} \frac{E_g m_e^3}{\hbar^4 \alpha^2 \tau_3} \frac{1}{n_e^2} \quad (3.3)$$

где  $\tau_3$  - время релаксации 3-й угловой гармоники импульсного распределения:

$$\tau_3^{-1} = 2\pi N v_F \int_0^\pi \sigma(\theta) (1 - P_3(\cos \theta)) \sin \theta d\theta \quad (3.4)$$

Здесь  $N$  - концентрация рассеивателей,  $v_F$  - скорость Ферми,  $\sigma(\theta)$  - парциальное сечение рассеяния,  $P_3$  - 3-й полином Лежандра;  $P_3(\cos \theta) = (5\cos^3 \theta - 3\cos \theta)/2$ . Для сравнения, время релаксации импульса определяется как

$$\tau_p^{-1} = 2\pi N v_F \int_0^\pi \sigma(\theta) (1 - P_1(\cos \theta)) \sin \theta d\theta \quad (3.5)$$

где  $P_1(\cos \theta) = \cos(\theta)$ .

В дальнейшем мы будем считать, что все доноры ионизованы, а степень компенсации мала, так что  $N = n_e = n_D$ . При низких температурах доминирующим механизмом рассеяния в объёмных вырожденных полупроводниках является рассеяние на заряженных примесях. В этом случае парциальное сечение  $\sigma(\theta)$  определяется рассеянием на экранированном кулоновском потенциале, и в Борновском приближении равно [46]:

$$\sigma(\theta) = \frac{R^*}{4E_F k_F^2} \cdot \frac{1}{[\sin^2(\theta/2) + x^2]^2} \quad (3.6)$$

где  $R^* = m_e e^4 / (2\varepsilon^2 \hbar^2)$  - эффективный ридберг,  $x = 1 / (2r_D k_F) = (3\pi^5 a_B^3 n_D)^{-1/6}$ ,

$k_F = \sqrt{2m_e E_F} / \hbar$  - волновой вектор Ферми,  $r_D = \frac{1}{2} \left( \frac{\pi a_B^3}{3n_D} \right)^{1/6}$  - радиус экранирования

вырожденным электронным газом, и  $a_B = \frac{\hbar^2 \varepsilon}{m_e e^2}$  - эффективный Боровский радиус

электрона в полупроводнике.

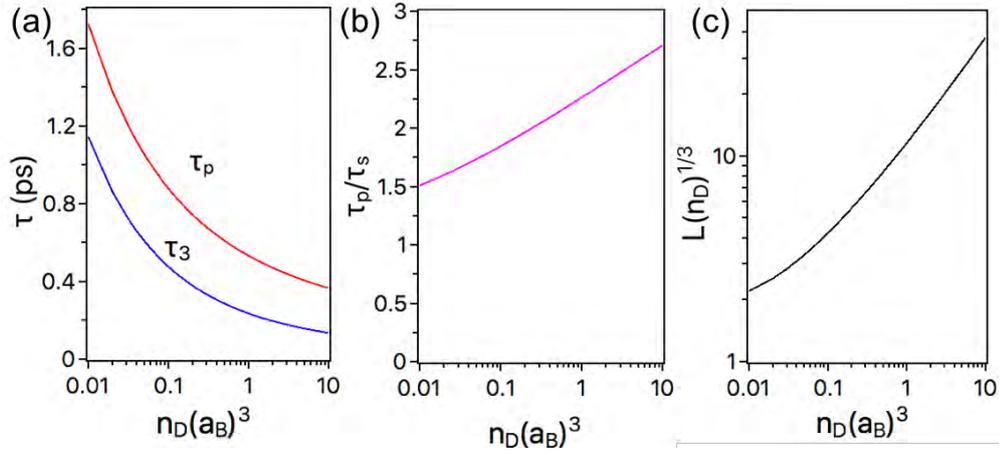
Из формул (3.4) – (3.6) получаем выражения для времён  $\tau_3$  и  $\tau_p$ :

$$\begin{aligned} \tau_3 &= \frac{12\sqrt{2}\pi^2 \hbar}{R^*} F_3^{-1}(x) \\ \tau_p &= \frac{12\sqrt{2}\pi^2 \hbar}{R^*} F_1^{-1}(x) \end{aligned} \quad (3.7)$$

где

$$\begin{aligned}
 F_3(x) &= 2\pi \int_0^\pi \frac{1 - P_3(\cos \theta)}{[\sin^2(\theta/2) + x^2]^2} \sin \theta d\theta = 8\pi \left[ 6(1 + 5x^2 + 5x^4) \ln \left( 1 + \frac{1}{x^2} \right) - 5x^2 - \frac{(5x^2 + 4)^2}{1 + x^2} \right] \\
 F_1(x) &= 2\pi \int_0^\pi \frac{1 - P_1(\cos \theta)}{[\sin^2(\theta/2) + x^2]^2} \sin \theta d\theta = 8\pi \left[ \ln \left( 1 + \frac{1}{x^2} \right) - \frac{1}{1 + x^2} \right]
 \end{aligned} \tag{3.8}$$

На Рис.3.3а показаны зависимости  $\tau_3$  и  $\tau_p$  от безразмерной концентрации доноров  $a_B^3 n_D$ , а на Рис.3.3б – их отношение в тех же координатах. Рис. 3.3с показывает длину свободного пробега как функцию безразмерной концентрации; как видно из рисунка, длина пробега превышает среднее расстояние между примесями, но при минимальных концентрациях в пределах металлической фазы это превышение невелико – примерно в 3 раза.



**Рисунок 3.3** Зависимости времён релаксации первой и третьей угловых гармоник импульсного распределения (a), их отношения (b) и длины свободного пробега (c) от концентрации доноров в вырожденном полупроводнике.

Как видно из Рис. 3.3b, отношение времён  $\tau_3$  и  $\tau_p$  в актуальном диапазоне концентраций примеси (для GaAs  $a_B = 9.6 \text{ nm}$ , так что  $a_B^3 n_D = 0.01$  соответствует  $n_D = 1.13 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) не выходит на асимптотическую величину  $1/6$ , соответствующую рассеянию на очень малые углы ( $\theta \ll 1$ ). Поэтому формула для скорости спиновой релаксации, выраженной через  $\tau_p$  [7], даёт в исследованном диапазоне концентраций неточный результат.

Подставляя в (3.3) параметры арсенида галлия, получаем

$$\tau_{S\_GaAs}^{DP} = \frac{1.8 \cdot 10^{10}}{\alpha^2 \tau_3 n_D^2} \quad (3.9)$$

Сопоставление теории с экспериментом приведено на Рис.3.2. В актуальном диапазоне концентраций  $\tau_3$  слабо зависит от  $n_D$ . Поэтому формула (3.9) даёт  $\tau_s$ , примерно обратно пропорциональное квадрату концентрации доноров, в полном согласии с результатами эксперимента. Однако, если использовать зависимость  $\tau_3(n_D)$  с префактором, рассчитанным в Борновском приближении (3.7), возникает значительное количественное рассогласование с данными эксперимента (синяя штриховая кривая на Рисунке 3.2). Более того, сами полученные таким образом времена  $\tau_3$  не согласуются с полученными экспериментально в [43], где  $\tau_3$  определялось из кривых подавления спиновой релаксации продольным магнитным полем. Калибровка зависимости  $\tau_3(n_D)$  на экспериментальное

значение  $\tau_3(3.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}) = 40 \text{ fs}$  даёт хорошее согласие теоретически рассчитанного  $\tau_3(n_D)$  с экспериментом во всём диапазоне концентраций. Согласие становится ещё лучше, если учесть поправку к  $\tau_3$  за счёт эффекта слабой локализации [43], которая пропорциональна  $n_D^{-1}$  и составляет примерно 60% при  $n_D = 3.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  [43] (сиреневая кривая на Рисунке 3.2).

Заметим, что, в отличие от времени релаксации 3-й угловой гармоники  $\tau_3$ , рассчитанное по (3.7) время релаксации первой гармоники импульсного распределения,  $\tau_p$ , неплохо согласуется с величинами порядка 1 пикосекунды, полученными из транспортных измерений в [45] для  $n_D \approx 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . Такое же противоречие было выявлено в нашей работе [47] для механизма Дьяконова-Переля в слаболегированном арсениде галлия n-типа при более высоких температурах (77 и 300К). Наблюдалось значительное (более чем на порядок) рассогласование времён релаксации импульсного распределения, полученных из транспортных измерений и из подавления спиновой релаксации продольным полем. Причина этому неясна, однако такая закономерность ставит под сомнение адекватность определения спин-орбитальной константы Дрессельхауза из сопоставления скорости спиновой релаксации с транспортными параметрами электронов. Поэтому в данной работе используется значение  $\alpha = 0.063$ , соответствующее энергетической константе  $\gamma_D = 36 \text{ eV} \cdot \text{Å}^3$ , измеренное в работе [48] по спектрам рассеяния с переворотом спина.

### 3.2.2. Релаксация в диэлектрической фазе

#### 3.2.2.1. Спиновая релаксация связанных на донорах электронов в отсутствие внешнего магнитного поля

В отсутствии внешнего магнитного поля спиновая релаксация лимитируется передачей углового момента в решётку. В конечном итоге это всегда происходит за счёт анизотропных взаимодействий. Для локализованных электронов есть два пути: передать угловой момент через сверхтонкое взаимодействие ядрам (которые затем сбросят его в решётку через анизотропное диполь-дипольное

взаимодействием) или непосредственно отправить его в решётку через спин-орбитальное взаимодействие. При низких температурах последняя возможность осуществляется путём флип-флоп переходов с участием анизотропного обменного взаимодействия – такой процесс не требует испускания или поглощения фононов.

Механизм спиновой релаксации электронов за счёт сверхтонкого взаимодействия был предложен в 1973 году Дьяконовым и Перелем [26]. Поскольку локализованный на мелком доноре электрон взаимодействует с большим числом (порядка  $10^5$ ) ядер, среднеквадратичная флуктуация полного спина этих ядер составляет несколько сотен. Такая спиновая флуктуация может быть рассмотрена квазиклассически, а взаимодействие спина электрона со спинами ядер в области его локализации может быть представлено как воздействие на электрон поля Оверхаузера, созданного ядерной спиновой флуктуацией. В результате спин электрона испытывает Ларморову прецессию вокруг флуктуационного поля ядер. В ансамбле не связанных друг с другом центров локализации (квантовых точек или редко расположенных доноров в очень слабо легированном полупроводнике) это приводит к исчезновению в среднем компонент спина, перпендикулярных ядерной флуктуации на каждом центре. Усреднение по ансамблю продольных по отношению к ядерным флуктуационным полям компонент электронных спинов даёт остаточную поляризацию электронов, равную  $1/3$  от начальной. Распад исходной поляризации к уровню  $1/3$  происходит за время порядка периода прецессии электронного спина в поле ядерной флуктуации [29]. Такой режим релаксации наблюдался в экспериментах с временным разрешением на ансамбле квантовых точек [30].

В ансамбле локализованных на донорах электронов, как правило, реализуется другой режим спиновой релаксации, который и был исходно рассмотрен Дьяконовым и Перелем [26, 1]. Это режим динамического усреднения, при котором электронный спин успевает совершить лишь незначительную часть оборота вокруг флуктуационного ядерного поля в течение так называемого времени корреляции. Время корреляции определяется сохраняющимися угловой

момент процессами переноса спина между центрами локализации. По истечении этого времени спин электрона с большой вероятностью окажется локализован на другом центре и, соответственно, подвергнется воздействию флуктуационного ядерного поля, никак не коррелированного с тем, что действовало на него раньше. Последовательное воздействие некоррелированных случайных полей, каждое из которых действует на спин в течение короткого времени, приводит к его экспоненциальной релаксации с декрементом, заданным хорошо известной формулой динамического усреднения [5]:

$$\tau_{SN}^{-1} = \frac{2}{3} \langle \omega_f^2 \rangle \tau_c \quad (3.10)$$

где  $\langle \omega_f^2 \rangle$  - средний квадрат частоты прецессии электронного спина в поле ядерной спиновой флуктуации (для мелкого донора в GaAs  $\langle \omega_f^2 \rangle^{1/2} \approx 2 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$  [26]),  $\tau_c$  - время корреляции электронного спина. При этом в магнитном поле, направленном вдоль среднего спина электронов, спиновая релаксация подавляется, следуя лоренциану:

$$\tau_{SN}^{-1}(B) = \frac{\tau_S^{-1}(0)}{1 + B^2 / B_R^2} \quad (3.11)$$

где  $B_R = \hbar / \mu_B g_e \tau_c$  [1].

Дьяконов и Перель [26] предположили, что время корреляции обусловлено прыжками электронов на незаполненные донорные центры. Результаты наших экспериментов (в частности, отсутствие существенной разницы времён релаксации при температурах 2К и 4.2К) свидетельствуют в пользу того, что при гелиевых температурах время корреляции определяется флип-флоп переходами между спинами электронов, локализованных на различных донорах. Такие переходы, обусловленные обменным взаимодействием локализованных электронов, не сопровождаются переносом заряда. Поэтому изменение энергии при флип-флоп переходе значительно меньше, чем при прыжке (энергия спин-спиновых взаимодействий в примесной зоне на два-три порядка меньше характерных энергий электростатических взаимодействий). В результате спиновые переходы не требуют участия фононов и при низких температурах идут

с гораздо большей скоростью, чем прыжковые. Сравнительная оценка скоростей спиновых и прыжковых переходов для n-GaAs дана в [21].

Время корреляции, обусловленное обменным взаимодействием между локализованными на донорах электронами, можно оценить как [21]:

$$\tau_c \approx \hbar / \langle J \rangle \quad (3.12)$$

где  $\langle J \rangle$  - среднее значение константы обменного взаимодействия. Для водородоподобных центров обменная константа дается формулой Горькова-Питаевского-Херринга-Фликкера [17-19] (см. главу 1):

$$J_{ij} = 0.82 \frac{e^2}{\epsilon a_B} \left( \frac{r_{ij}}{a_B} \right)^{5/2} \exp\left( -\frac{2r_{ij}}{a} \right) \quad (3.13)$$

где  $a_B$  - Боровский радиус электрона на доноре,  $r_{ij}$  - расстояние между донорными центрами  $i$  и  $j$ .

В силу экспоненциальной зависимости обменной константы от расстояния между примесями её значение для различных пар доноров сильно флуктуирует. Вычисляя среднее значение  $\langle J \rangle$ , разумно воспользоваться результатами теории протекания и подставить в (3.13) вместо  $r_{ij}$  величину  $\langle r \rangle = 0.865 n_D^{-1/3}$  [37]. Тем самым, исключаются из рассмотрения близкие пары доноров и изолированные центры, а учитываются доноры, принадлежащие бесконечному кластеру, по которым идёт спиновая диффузия за счёт флип-флоп переходов. Таким образом, получается следующая зависимость времени корреляции от концентрации доноров:

$$\tau_c = 1.75 \frac{\hbar \epsilon a_B}{e^2} \left( a_B n_D^{1/3} \right)^{5/2} \exp\left( \frac{1.73}{a_B n_D^{1/3}} \right) \quad (3.14)$$

Как видно из Рис. 3.2, формула (3.14) хорошо воспроизводит экспериментально измеренные значения  $\tau_c$  при концентрации доноров  $n_D > 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . Таким образом, спиновая релаксация в этом диапазоне концентраций оказывается тесно связанной со спиновой диффузией в примесной зоне. Соответственно, время корреляции можно связать с коэффициентом спиновой диффузии  $D_s$  [21]:

$$\tau_c \approx (3n_D^{2/3} D_S)^{-1} \quad (3.15)$$

При меньших значениях  $n_D$  модель спиновой диффузии по бесконечному кластеру перестаёт работать, и время корреляции лимитируется другими процессами. В качестве таковых можно указать обменное взаимодействие в кластерах конечных размеров или взаимодействие со свободными электронами [21].

Релаксация на ядерных спиновых флуктуациях в режиме динамического усреднения всегда характеризуется удлинением времени спиновой релаксации с ростом концентрации доноров вследствие укорочения времени корреляции. Как видно из Рис.3.2, расчёт по формуле (3.10) с экспериментально определённым временем корреляции даёт хорошее количественное согласие с измеренными временами спиновой релаксации электронов при  $n_D < 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . Однако при больших концентрациях наблюдается не только количественное, но и резкое качественное рассогласование с результатами эксперимента: измеренные времена релаксации начинают укорачиваться с ростом легирования. Это свидетельствует о переходе к другому механизму спиновой релаксации, обусловленному анизотропией обменного взаимодействия.

Обменное взаимодействие локализованных электронов в полупроводнике без центра инверсии описывается гамильтонианом (2.2). Как обсуждалось в главе 2, флип-флоп переход под действием такого гамильтониана сопровождается поворотом спина на угол  $\chi(\vec{r})$  вокруг оси, определяемой ориентацией прямой, соединяющей доноры, относительно кристаллических осей. В режиме, когда время корреляции электронного спина на доноре определяется спиновой диффузией (как показано выше, этот режим реализуется в  $n$ -GaAs при  $n_D > 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ), спин в процессе диффузии испытывает большое число малых случайных поворотов, определяемых формулой (2.9). Поскольку угол поворота в асимптотической области (т.е. при  $r \gg a_B$ , что верно для подавляющего большинства пар доноров в диэлектрическом GaAs с  $n_D < 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) пропорционален  $r$ , удобно ввести спин-орбитальную длину  $L_{SO}$ ,

удовлетворяющую условию  $\sqrt{\left\langle \left[ \gamma \left( L_{SO} \frac{\vec{r}}{r} \right) \right]^2 \right\rangle} = 1$ , где угол  $\gamma$  усреднён по направлениям вектора  $\vec{r}$ . Спин-орбитальная длина определяется константой при нечётных по волновому вектору слагаемых в гамильтониане зоны проводимости и энергией связи локализованного электрона. Подставив выражение для угла  $\gamma$  из формулы (2.12), получаем после усреднения по углам:

$$L_{SO} = \frac{\sqrt{35}}{2} \alpha_{SO}^{-1} \sqrt{\frac{E_g}{E_B}} \cdot a_B \quad (3.16)$$

Для электронов, связанных на мелких донорах в объёмном арсениде галлия, спин-орбитальная длина равна приблизительно 7  $\mu\text{m}$ , что сопоставимо с экспериментально измеренной длиной спиновой диффузии (10  $\mu\text{m}$ ) [39]. Используя этот параметр, можно записать усреднённый по углу угол поворота спина как  $\langle \gamma^2(r) \rangle^{1/2} = r/L_{SO}$ . Память о первоначальном направлении спина теряется, когда накопленный угол поворота  $\Gamma$  становится порядка 1 радиана:

$$1 \approx \Gamma^2 = \sum_i \gamma_i^2 = \sum_i \left( \frac{r_i}{L_{SO}} \right)^2 = \frac{1}{L_{SO}^2} \sum_i r_i^2 = \frac{3L_{DS}^2}{L_{SO}^2} = \frac{3D_S \tau_{SA}}{L_{SO}^2} \quad (3.17)$$

Здесь  $L_{DS} = D_S \tau_{SA}$  - диффузионная длина электронного спина,  $\tau_{SA}$  - время спиновой релаксации за счёт анизотропии обменного взаимодействия. Из (3.17) получаем выражение для времени спиновой релаксации через коэффициент спиновой диффузии и спин-орбитальную длину:

$$\tau_{SA} \approx \frac{L_{SO}^2}{3D_S} = L_{SO}^2 n_D^{2/3} \tau_c \quad (3.18)$$

Используя формулы (3.14) и (3.15), можно выразить время спиновой релаксации через время корреляции и, в конечном итоге, через концентрацию доноров:

$$\tau_{SA} \approx 1.75 \frac{\hbar \epsilon a_B}{e^2} \left( \frac{L_{SO}}{a_B} \right)^2 (n_D a_B^3)^{3/2} \exp\left( \frac{1.73}{n_D^{1/3} a_B} \right) \quad (3.19)$$

Полное время спиновой релаксации определяется суммой сверхтонкого и спин-орбитального вклада в скорость релаксации:

$$\tau_S = \left( \tau_{SN}^{-1} + \tau_{SA}^{-1} \right)^{-1} \quad (3.20)$$

На Рис. 3.2 показаны зависимости времён  $\tau_{SA}$  (пунктирная зелёная кривая) и  $\tau_S$  (сплошная зелёная кривая), рассчитанных в модели спиновой диффузии, от концентрации доноров. В диапазоне концентраций доноров  $2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3} < n_D < 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  даёт качественное и количественное (в пределах значительного разброса имеющихся данных, но в отсутствие каких-либо подгоночных параметров) согласие с экспериментом, и резкое качественное рассогласование в области малых концентраций,  $n_D < 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . Это связано с тем, что в этой области спиновая диффузия по бесконечному кластеру становится слишком медленной и перестаёт определять спиновую динамику (в частности, время корреляции, рассчитанное по формуле (3.14), становится длиннее периода прецессии электронного спина в характерном поле ядерной спиновой флуктуации, равного примерно 5нс). Однако времена спиновой релаксации и при слабом легировании остаются длиннее, чем 5 нс, а времена корреляции, измеренные по восстановлению поляризации в продольном магнитном поле – существенно короче. Как уже говорилось выше, это можно предположительно связать с обменным взаимодействием в кластерах конечных размеров. Адекватной количественной теории для этого диапазона концентраций построить не удалось, но экспериментально измеренные времена спиновой релаксации хорошо воспроизводятся формулами (3.10), (3.18) и (3.20) с временем корреляции, измеренным по восстановлению электронной спиновой поляризации при оптической ориентации в продольном магнитном поле. На Рисунке 3.2 полученная таким образом зависимость  $\tau_{SN}(n_D)$  показана оранжевой пунктирной кривой, а  $\tau_S(n_D)$  - оранжевой сплошной.

Наблюдающееся значительное (на порядок) различие времён релаксации в области концентраций доноров  $10^{15} \text{ cm}^{-3} < n_D < 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , измеренных [42, 44], с одной стороны, и в работе [43], с другой, обусловлено, по всей видимости, различием использованных структур. В [43] исследуемые слои арсенида галлия были заключены между специально легированными барьерами для устранения эффектов обеднения в приповерхностной области. В [42] и [44] использовались

объёмные слои и двойные гетероструктуры с однородным легированием. В условиях оптического возбуждения мог происходить фотоиндуцированный перенос электронов между барьерами и активный слой, в результате чего могло происходить либо опустошение части доноров, либо, наоборот, появление дополнительных делокализованных электронов. Это неизбежно приводит к изменению времени корреляции спина связанных на донорах электронов [21] и, как следствие, к изменению скорости их спиновой релаксации. Как было показано в [31], изменение  $\tau_s$  при этом может быть весьма значительным, до двух порядков величины.

### ***3.2.2.2. Спиновая релаксация связанных на донорах электронов во внешнем продольном магнитном поле***

Анизотропное обменное взаимодействие приводит к релаксации неравновесной спиновой поляризации электронов, но не обеспечивает передачи энергии в решетку. То же самое справедливо и для релаксации на ядрах – в этом случае происходит только обмен энергией с ядерной спиновой системой, теплоемкость которой мала, а время релаксации энергии очень длинное. Поэтому в продольном магнитном поле, когда внесение углового момента в спиновую систему сопровождается изменением ее Зеемановской энергии, спиновая релаксация может характеризоваться двумя временами релаксации – неравновесного спина  $T_2$  и энергии  $T_1$ , подобно тому, как это происходит в спиновой системе ядер решетки. При выполнении условия  $T_2 \ll T_1$  спиновую систему можно характеризовать спиновой температурой  $\theta$ , которая может отличаться от температуры решетки  $T$ .

Как следует из формул (3.11) и (3.12), релаксация углового момента подавляется в таких магнитных полях, при которых Зеемановская энергия электрона становится больше характерной энергии спин-спиновых взаимодействий. Последняя экспоненциально растёт с концентрацией доноров. Поэтому с ростом легирования можно ожидать появления диапазона магнитных полей, в котором релаксация неравновесного углового момента ещё не подавлена,

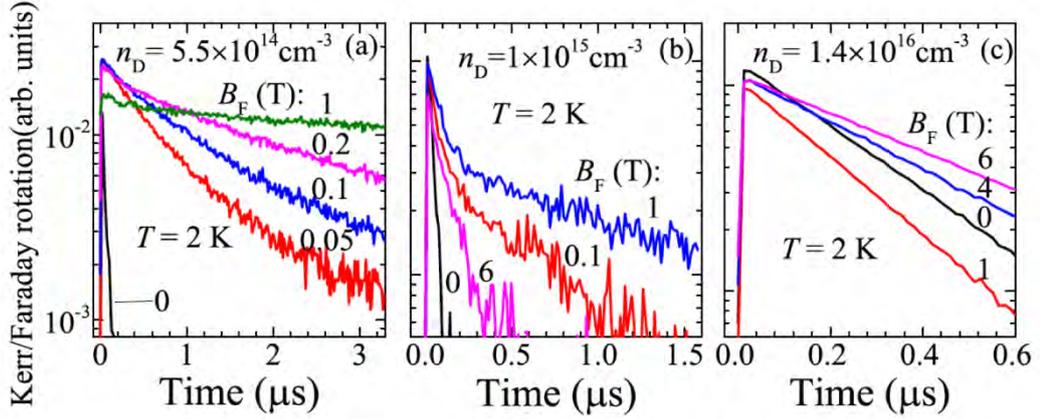
а передача Зеемановской энергии в решётку уже затруднена. При этом должна наблюдаться биэкспоненциальная динамика продольной спиновой релаксации электронов после возбуждения коротким импульсом циркулярно поляризованного света [21]. Сначала, за время  $T_2$ , происходит установление спиновой температуры. При этом средний спин электронов падает от исходного значения  $S_0$  до квазиравновесного значения

$$S_\beta = \frac{1}{4} \mu_B g_e B \beta = S_0 \frac{B^2}{B^2 + B_L^2} \quad (3.21)$$

где локальное поле  $B_L = 2(Sp\{H_{SS}^2\})^{1/2} / \mu_B g_e$  характеризует теплоёмкость энергетического резервуара спин-спиновых взаимодействий, задаваемых гамильтонианом  $H_{SS}$ ,  $\beta = \frac{1}{k_B \theta}$  - обратная спиновая температура электронов, устанавливающаяся после распределения исходной Зеемановской энергии между Зеемановским и спин-спиновым резервуарами [21]. Дальнейшая релаксация происходит за счёт уменьшения  $\beta$  и характеризуется временем  $T_1$ .

Такого рода эксперименты выполнил В.В.Белых методом фотоиндуцированного Фарадеевского/Керровского вращения с расширенным диапазоном временного разрешения [44]. В кристаллах *n*-GaAs с  $n_D \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  действительно отчётливо наблюдалась двухвременная спиновая динамика (см. Рис. 3.4), отсутствовавшая как при меньших концентрациях примеси (где спин-спиновые взаимодействия слишком слабы) так и при больших, где электроны начинают делокализоваться, и различие времён  $T_1$  и  $T_2$  исчезает. Однако экспериментальная зависимость амплитуд быстрой и медленной компоненты от магнитного поля значительно менее резкая, чем теоретическая, задаваемая формулой (3.21). Возможно, это связано с экспоненциальным разбросом энергий обменного взаимодействия в примесной зоне, приводящим к отсутствию единого параметра – локального поля – характеризующего спин-спиновый энергетический резервуар.

Блокировка энергетической релаксации продольным магнитным полем ярко проявляется в зависимости  $T_1$  от напряжённости продольного поля, наиболее отчётливо наблюдающейся в слаболегированном  $n$ -GaAs с  $n_D = 5.5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  [44].



**Рисунок 3.4** Временная зависимость сигналов Фарадеевского/Керровского вращения, отражающего спиновую динамику резидентных электронов после возбуждения коротким циркулярно поляризованным импульсом света, для различных магнитных полей и концентраций доноров. Эксперименты В.В.Белых из работы [44].

Энергетическая релаксация спиновой системы локализованных электронов требует участия электронных переходов с поглощением или испусканием фононов. Единственными такими переходами, возможными при низких температурах, являются прыжки электронов в парах, образованных заполненным и пустым донорными центрами. Как показано в [21], эффективно взаимодействуют с фононами «оптимальные» пары с разностью энергий порядка энергии фонона с волновым вектором, равным обратному Боровскому радиусу донора (десятые доли миллиэлектронвольта). Поскольку число таких пар мало, транспорт энергии электронной спиновой системы к парам осуществляется путём спиновой диффузии. Такая модель спин-решёточной релаксации хорошо известна для спиновых систем ядер в твёрдых телах, где роль стоков энергии в решётку играют редко расположенные парамагнитные центры. Скорость ограниченной диффузией спин-решёточной релаксации определяется соотношением Хуцишвили – Де Жена [49, 50]:

$$T_D^{-1} = 4\pi D_S a_c n_c \quad (3.22)$$

где  $a_c$  - эффективный радиус действия центра релаксации,  $n_c$  - концентрация таких центров. Подставляя вместо  $a_c$  среднее расстояние между донорами и

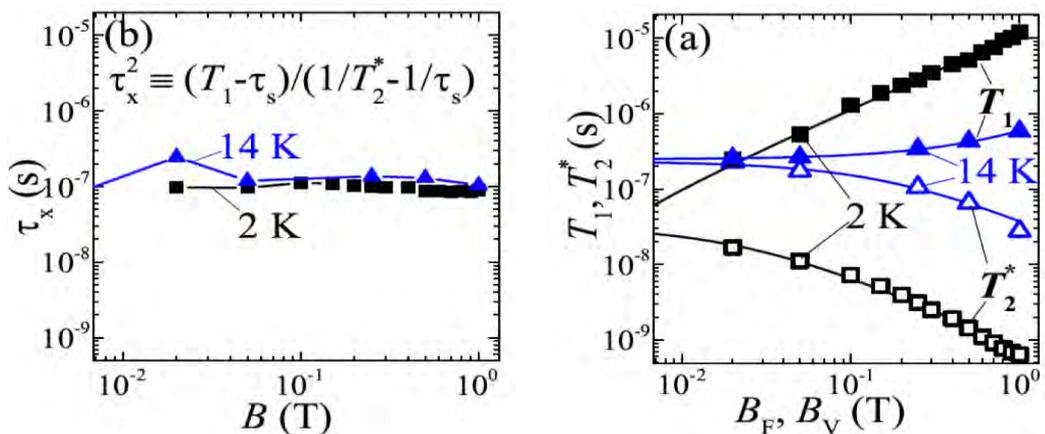
концентрацию оптимальных пар  $n_p$  вместо  $n_c$ , и выражая коэффициент спиновой диффузии через время корреляции по формуле (3.15), получаем

$$T_D \approx \frac{n_D}{4n_p} \tau_c \quad (3.23)$$

В сильном магнитном поле  $B > \langle J \rangle / \mu_B g_e$  время корреляции, определяемое вероятностью флип-флоп перехода между соседними донорами, начинает удлиняться с ростом магнитного поля из-за разброса  $g$ -факторов локализованных на донорах электронов. О наличии такого разброса свидетельствует линейный по полю рост декремента затухания спиновых биений  $(T_2^*)^{-1}$  в поперечном магнитном поле (Рис. 3.5). Независимое измерение разброса  $g$ -факторов из зависимости  $T_2^*(B)$  позволяет рассчитать время корреляции, которое определяется спектром мощности случайных полей обменного взаимодействия  $b_{ex}^2(\omega)$ , действующих на каждый электронный спин со стороны соседей:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau_c} &\approx \frac{(\langle g_e \rangle \mu_B)^2}{\hbar^2} \langle b_{ex}^2(\omega) \rangle_g = \frac{1}{\hbar^2} \langle J^2 \rangle \frac{\hbar}{\mu_B B} \int \rho_g^2 \left( \frac{\hbar \omega}{\mu_B B} \right) dg_e = \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \langle J^2 \rangle \frac{\hbar}{\mu_B \delta g_e B} \approx \frac{T_2^*}{\tau_c^2(B=0)} \end{aligned} \quad (3.24)$$

Здесь  $\rho_g$  - функция распределения электронного  $g$ -фактора,  $\delta g_e = (\int \rho_g^2 dg)^{-1}$  - ширина этого распределения, определяющая  $(T_2^*)^{-1}$ .



**Рисунок 3.5** Зависимость времён продольной ( $T_1$ ) и поперечной ( $T_2$ ) электронов, а также их произведения, от магнитного поля в слабелегированном  $n$ -GaAs. Эксперименты В.В.Белых [44].

Из (3.23) и (3.24) следует соотношение

$$T_2^* T_D \approx \frac{n_D}{4n_p} \tau_c^2(B=0) \quad (3.25)$$

Как видно из Рис.3.5b, произведение  $T_2^* T_D$  сохраняется постоянным при изменении магнитного поля более, чем на два порядка. Соотношение (3.25) позволяет, зная  $\tau_c(B=0)$ , определить концентрацию оптимальных пар, которая оказывается равной  $3.5 \cdot 10^{-3} n_D$ , что согласуется с оценкой, приведённой в [21].

Таким образом, хотя в слабых магнитных полях спиновая релаксация в слабо легированном арсениде галлия оказывается не связанной со спиновой диффузией и происходит локально, в небольших кластерах доноров, с увеличением магнитного поля роль спиновой диффузии возрастает из-за подавления релаксации, обусловленного блокировкой передачи Зеемановской энергии в решётку. В сильных магнитных полях скорость спиновой релаксации ограничивается обменной диффузией к редко расположенным центрам релаксации.

### Основные результаты главы 3:

1. Теоретически и экспериментально (на примере арсенида галлия) исследована спиновая релаксация электронов в легированных полупроводниках n-типа при низких температурах.
2. Показано, что в нулевом магнитном поле релаксация определяется тремя механизмами, которые сменяют друг друга при увеличении концентрации донорной примеси. При низких концентрациях доноров это релаксация за счёт сверхтонкого взаимодействия с ядрами решётки. С ростом концентрации (в n-GaAs – при  $n_D \approx 2 \div 4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ) начинает доминировать спин-орбитальный механизм, обусловленный анизотропией обменного взаимодействия между локализованными электронами. В металлической фазе (в n-GaAs – при  $n_D > 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) спиновая релаксация происходит за счёт механизма Дьяконова-Переля.

3. В продольном магнитном поле в слаболегированных полупроводниках релаксация замедляется из-за блокировки передачи Зеемановской энергии спинов в решётку. Время спин-решёточной релаксации определяется спиновой диффузией к редким парам из близко расположенных заряженного и нейтрального донора, где энергия передаётся в решётку при туннельных прыжках с поглощением или испусканием фонона.
4. При большем легировании (в n-GaAs – при  $n_D \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ) спин-спиновое взаимодействие между электронами становится достаточно сильным для того, чтобы в ансамбле электронных спинов могла установиться спиновая температура. Это проявляется в появлении двух сильно различающихся времён релаксации в продольном поле, характеризующих установление спиновой температуры и её релаксацию к температуре решётки.

*Исследования, составившие содержание данной главы, опубликованы в работах [21, 41- 44, 47].*

## **Глава 4. Невозмущающие оптические методы измерения намагниченности ядерной спиновой системы**

Полупроводники и полупроводниковые структуры предоставляют уникальную возможность создания высокой спиновой поляризации ядер методом оптической ориентации, а точнее - динамической поляризации ядерных спинов оптически ориентированными спинами электронов [1, 13, 25]. Поляризованные ядерные спины создают эффективное магнитное поле (поле Оверхаузера), расщепляющее электронные спиновые состояния, причём энергии спиновых расщеплений могут достигать сотен микроэлектронвольт, что эквивалентно действию внешнего магнитного поля напряжённостью в несколько Тесла. Это позволяет измерять ядерную поляризацию оптическими методами, фактически измеряя расщепление электронных состояний полем Оверхаузера. Исторически первые такие методы основаны на модификации циркулярной поляризации люминесценции в условиях оптической ориентации электронных спинов полем Оверхаузера – эффекте Ханле и восстановлении циркулярной поляризации продольным эффективным магнитным полем [13]. Затем, с развитием экспериментальной техники, стали применяться измерение частоты электронных спиновых биений методом спектроскопии накачка-зондирование и непосредственное измерение электронного спинового расщепления по спектрам люминесценции в одиночных квантовых точках (см. обзор в [25]).

Все эти методы требуют оптического возбуждения реальных межзонных переходов с генерацией носителей заряда. Поэтому они неизбежно сопряжены с возмущением исследуемой ядерной спиновой системы за счёт индуцированной носителями спиновой релаксации, динамической поляризации и воздействия поля Найта. Это стало одной из причин того, что свойства спин-поляризованной ядерной системы полупроводника, предоставленной самой себе, т.е. не взаимодействующей с неравновесными

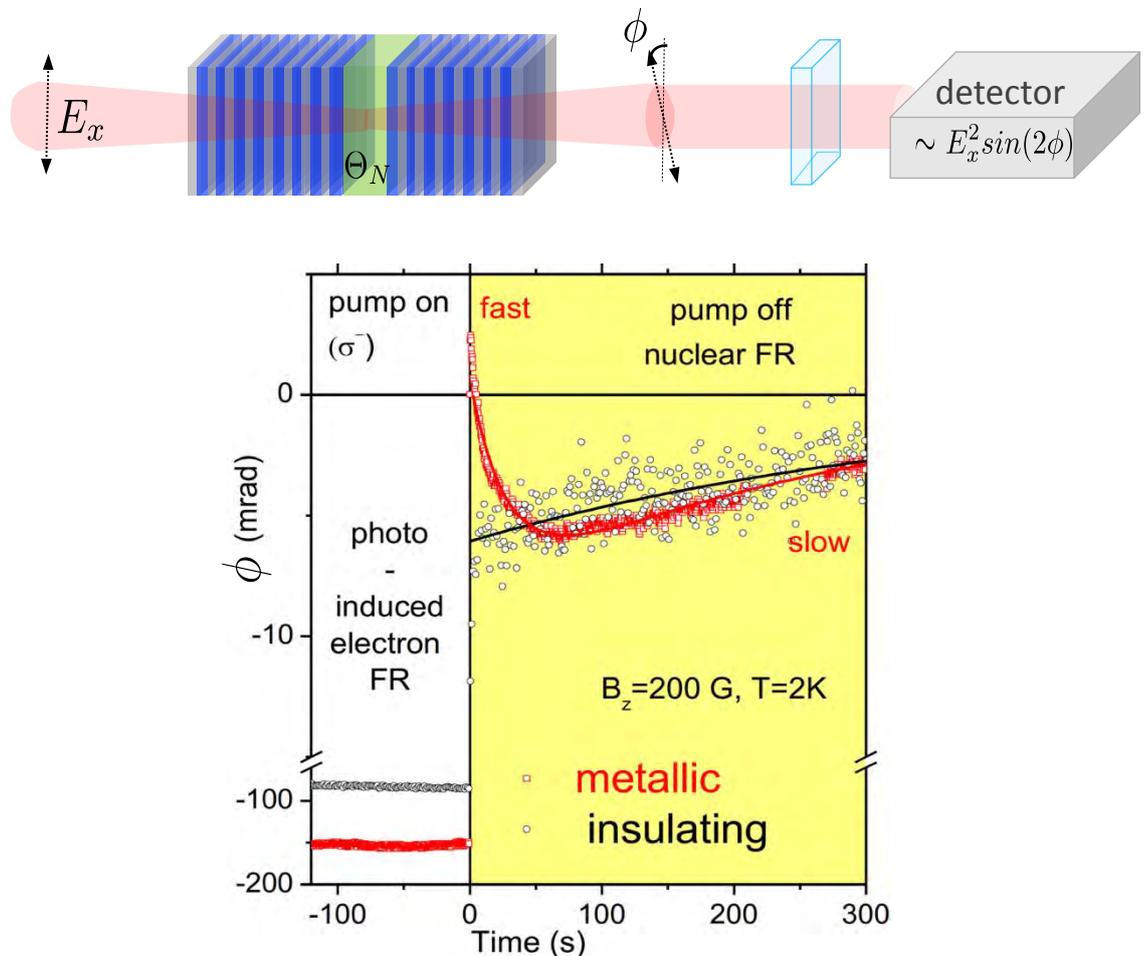
носителями заряда, созданными в процессе оптического зондирования, остались практически неизученными. Таким образом, такие важные свойства ядерной спиновой системы, как механизмы спин-решёточной релаксации и формирования спиновой температуры, остались неизвестными даже для такого модельного полупроводника, как арсенид галлия – в то время как динамически связанная электронно-ядерная система, поддерживаемая оптической накачкой электронов, была подробно исследована [13]. Исследованию спин-решёточной релаксации и термодинамики ядерной спиновой системы на примере арсенида галлия посвящены главы 5 и 6. В данной главе будут описаны использованные при этом экспериментальные методы, часть из которых основана на впервые наблюдавшихся в наших работах явлениях.

#### **4.1. Нерезонансное Фарадеевское вращение в поле Оверхаузера**

Обычный эффект Фарадея – вращение плоскости поляризации линейно поляризованного света при прохождении через прозрачную среду в магнитном поле, направленном вдоль луча света - обусловлен раздвижкой энергий оптических переходов для фотонов, поляризованных по правому и левому кругу. В наших экспериментах реализован аналогичный эффект в эффективном поле, образованном суммой внешнего поля и поля Оверхаузера предварительно оптически ориентированных ядерных спинов. Такой эффект был теоретически рассмотрен Артёмовой и Меркуловым [51]. По их оценке, для наблюдения эффекта необходимо, чтобы длина оптического пути в слое полупроводника с поляризованными ядрами составляла порядка одного миллиметра. Поляризовать ядра оптически на такую глубину сложно из-за высокого коэффициента поглощения накачивающего света, который должен иметь энергию кванта, большую ширины запрещённой зоны. Основное отличие схемы нашего эксперимента от предложения Артёмовой и Меркулова состоит в использовании структуры с микрорезонатором. Это позволяет за

счёт многопроходности уменьшить толщину зондируемого слоя на 3 порядка. В первых экспериментах по обнаружению и исследованию индуцированного ядерным полем эффекта Фарадея мы использовали структуры с n-легированным активным слоем GaAs в микрорезонаторе, образованном Брэгговскими отражателями из 25 (переднее зеркало) и 30 (заднее зеркало) пар слоёв AlAs и  $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ , оптической толщиной в  $3/2$  длины волны на энергии фотонной моды 1.497 эВ. Такое положение фотонной моды резонатора обеспечивало отстройку в 18 мэВ от края зоны (определённого по максимуму люминесценции), так что зондирующий свет попадал в область прозрачности арсенида галлия. Эффективная толщина оптического пути зондирующего света в активном слое составляла при этом 0.7 мм при фактической толщине слоя 358 нм. Эксперимент выполнялся следующим образом. Накачка ядерных спинов производилась циркулярно поляризованным излучением полупроводникового лазера на длине волны 780 нм (энергия фотона 1.59 эВ, превышающая ширину запрещённой зоны арсенида галлия), соответствующей первому минимуму коэффициента отражения переднего Брэгговского зеркала выше стоп-зоны. Во время накачки было включено постоянное магнитное поле напряжённостью 200 Гс, направленное вдоль нормали к плоскости структуры. Накачка включалась на время от 1 до 30 минут. Зондирование производилось спектрально широким линейно поляризованным излучением импульсного лазера, центрированным на длину волны фотонной моды резонатора. Регистрировался угол поворота прошедшего через микрорезонатор света, для чего использовались различные поляриметрические схемы (в частности, использующая фотоупругий модулятор поляризации, призму Глана и лавинный фотодиод в качестве детектора, или же схема с балансным детектором на основе призмы Волластона и фотодиодного моста). Во время накачки наблюдалось значительное Фарадеевское вращение поляризованными по спину электронами, зависящее также от степени поляризации ядерных спинов [52]. После выключения накачки наблюдался медленно спадающий сигнал

Фарадеевского вращения, индуцированный ядерной спиновой поляризацией (Рис.4.1). В случае активного слоя в металлической фазе ( $n_D=2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ ) сигнал ядерного Фарадеевского вращения состоит из двух компонент противоположного знака, имеющих сильно различающиеся времена

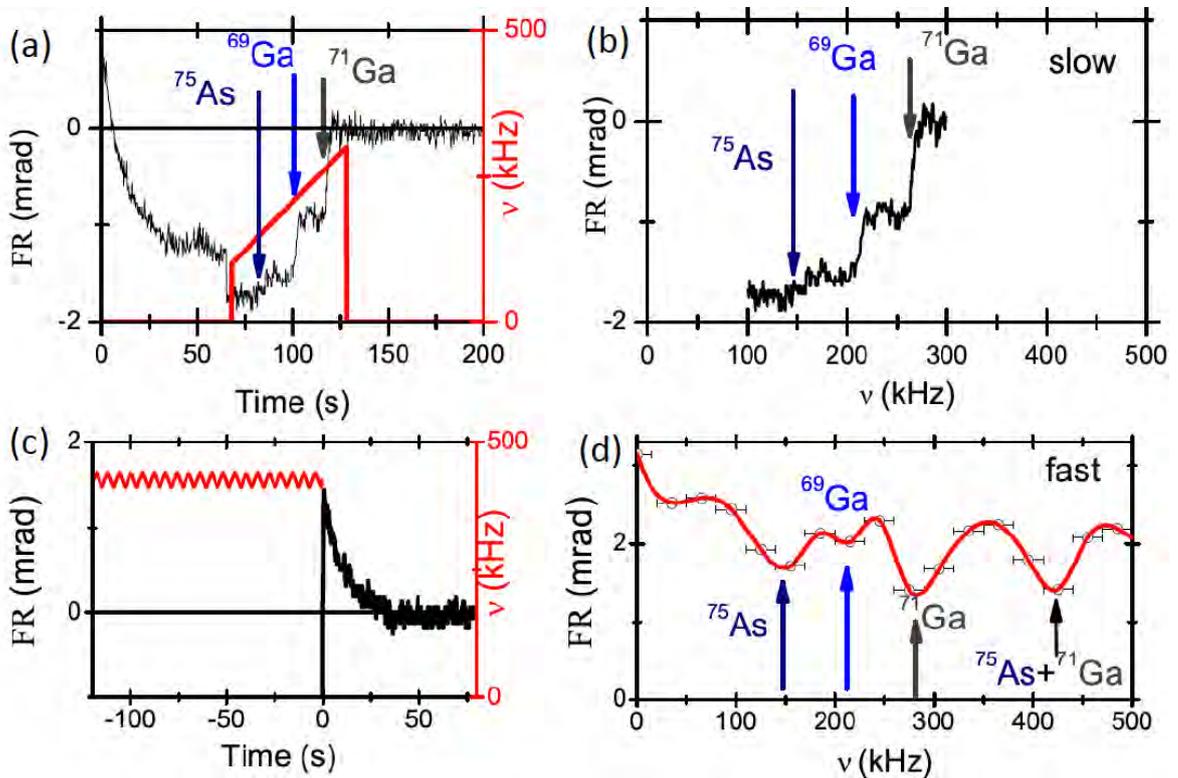


**Рисунок 4.1** Фарадеевское вращение, индуцированное полем Оверхаузера в n-GaAs. а) схема эксперимента (описание в тексте). б) угол Фарадеевского вращения как функция времени.

релаксации. В случае диэлектрического GaAs ( $n_D=2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ ) в качестве активного слоя, наблюдалась только одна, медленная, компонента [53].

Для доказательства того, что этот сигнал обусловлен спиновой поляризацией ядер, были выполнены эксперименты по оптически детектируемому ядерному магнитному резонансу. Методика эксперимента по ЯМР для быстрой и медленной компоненты Фарадеевского вращения была разной. Для медленной компоненты радиочастотное поле  $B_{RF}$  амплитудой 2.5 Гс включалось через 100 секунд после выключения накачки и разворачивалось

по частоте от 100 кГц до 300 кГц (Рис.4.2а). При этом сохранялось включённым постоянное магнитное поле  $B=200$  Гс. При прохождении частоты  $B_{RF}$  через резонанс каждого из трёх изотопов наблюдался резкий спад сигнала Фарадеевского вращения (Рис.4.2б). В случае быстрой компоненты такой подход был невозможен из-за её быстрого распада. В этом случае  $B_{RF}$  такой же амплитуды (2.5 Гс) и фиксированной частоты прикладывалось во время накачки. Для усиления эффекта радиочастотного поля в условиях неоднородного уширения резонансов применялась частотная модуляция  $B_{RF}$  с размахом 30 кГц. На Рис.4.2д показана зависимость амплитуды быстрой компоненты от частоты  $B_{RF}$ . Здесь также видны резонансы всех трёх изотопов, а также комбинированный резонанс ядер мышьяка и галлия-71.



**Рисунок 4.2** Ядерный магнитный резонанс, детектируемый по Фарадеевскому вращению полем Оверхаузера. а) сигнал «медленной» компоненты Фарадеевского вращения как функция времени. Красная линия показывает частоту переменного магнитного поля. б) то же как функция частоты. в) схема воздействия переменным полем на «быструю» компоненту. д) амплитуда «быстрой» компоненты как функция частоты переменного поля, приложенного во время накачки.

Две компоненты ядерного Фарадеевского вращения, наблюдаемые в арсениде галлия n-типа с металлической стороны перехода диэлектрик-металл,

демонстрируют два механизма формирования сигнала Фарадеевского вращения. Направление поворота плоскости поляризации в медленной компоненте и тот факт, что её амплитуда нарастает с увеличением времени накачки в диапазоне сотен и даже тысяч секунд, позволяют уверенно ассоциировать её с поляризацией ядерных спинов вдали от примесных центров. Такие спины, заполняющие весь объём активного слоя, создают поле Оверхаузера, расщепляющее состояния зоны проводимости, и именно с этим расщеплением и связан наблюдаемый сигнал. Выражение для эффективной константы Верде в этом случае (совпадающее с точностью до числового множителя с результатом Артёмовой и Меркулова) получено М.М.Глазовым [53]:

$$V_N^f = - \frac{e^2 \hbar}{12 m c n} \frac{g_e \mu_B}{4 \sqrt{\delta}} \sum_{h=hh, lh} \left( \frac{2 \mu_h}{\hbar^2} \right)^{3/2} \quad (4.1)$$

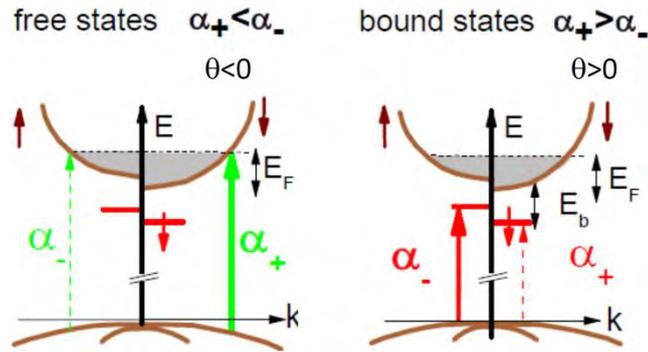
Здесь  $n$  – фоновый показатель преломления кристалла,  $\delta$  - отстройка энергии фотона зондирующего луча от ширины запрещённой зоны,  $\mu_h$  - приведённая масса электронно-дырочной пары с участием тяжёлой ( $hh$ ) или лёгкой ( $lh$ ) дырки.

Происхождение быстрой компоненты не столь очевидно. Короткое время релаксации ядерной спиновой поляризации характерно для ядер, расположенных вблизи парамагнитных примесных центров [12, 49, 50]. Естественно предположить, что в полупроводнике n-типа в качестве таких центров выступают нейтральные доноры. Однако быстрая компонента наблюдалась в полупроводнике с концентрацией примеси немного выше перехода диэлектрик-металл, где электроны в основном делокализованы и образуют, при низкой температуре, Ферми-газ. Поэтому вероятнее всего она обусловлена электронами, связанными на двухзарядных кластерах, образованных парами близко расположенных доноров. Взаимодействие спина локализованного электрона с электронным газом (см. главу 3) приводит к короткому времени корреляции спина локализованного электрона, порядка 10

пикосекунд. В этих условиях релаксация спинов ядер под действием флуктуирующего поля Найта локализованного электрона происходит за время порядка 10 секунд, в согласии с наблюдаемым временем затухания быстрой компоненты. Более длинное (порядка 300 пикосекунд) время корреляции электронного спина в диэлектрической фазе приводит к характерным временам релаксации ядер в доли секунды, т.е. за пределами временного разрешения экспериментальной установки; вероятно, поэтому быстрая компонента в структуре с диэлектрическим активным слоем GaAs и не наблюдалась. Подробнее о релаксации ядерных спинов при различных уровнях легирования речь пойдёт в главе 6. Здесь же важен тот факт, что быстрая компонента имеет противоположный знак по отношению к медленной, обусловленной зонными состояниями. Это объясняется другим механизмом формирования Фарадеевского сигнала – за счёт Паулиевской блокады оптического перехода на нижайший спиновый подуровень локализованного электрона. Рис. 4.3 поясняет различие знаков эффекта Фарадея для зонных и локализованных состояний: в первом случае оптический переход на более низкие из расщеплённых полем Оверхаузера состояний, вносящие основной вклад в эффект Фарадея, более эффективен, а во втором – менее эффективен.

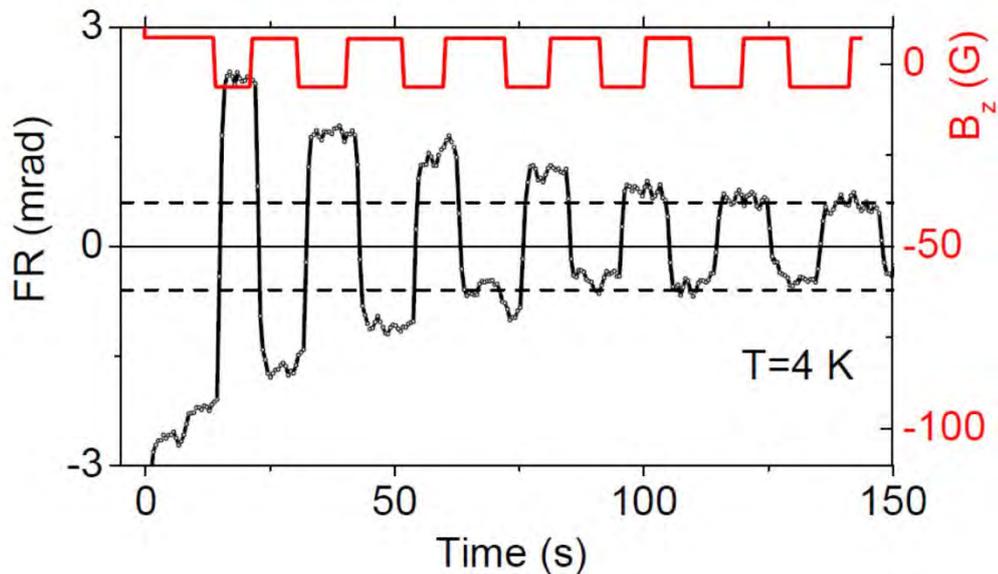
Рис.4.4. показывает зарегистрированное по эффекту Фарадея перемагничивание охлаждённых ядерных спинов при изменении знака внешнего магнитного поля (см. подробнее в главе 5).

Таким образом, нерезонансный эффект Фарадея, индуцированный полем



**Рисунок 4.3** Сравнительные интенсивности оптических переходов между валентной зоной и зоной проводимости (слева) и между валентной зоной и локализованными электронными состояниями, занятыми одним электроном (справа).

Оверхаузера, позволяет регистрировать поляризацию ядер как в объёме



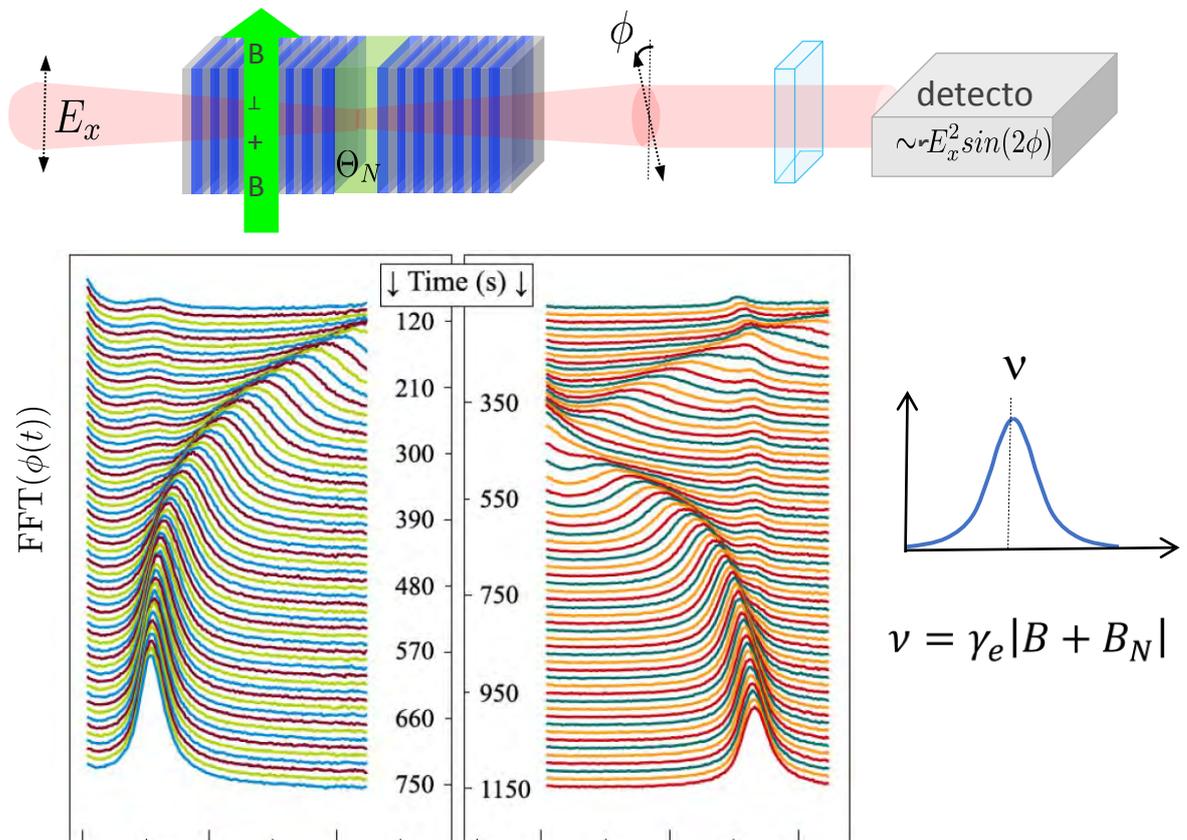
**Рисунок 4.4** Фарадеевское вращение при изменении знака внешнего поля. Затухающий сигнал обусловлен полем Оверхаузера.

полупроводника, так и вблизи центров локализации электронов, и исследовать временные и магнитополевые зависимости ядерной намагниченности в реальном времени.

#### 4.2. Спектроскопия электронных спиновых шумов

Оптическая спектроскопия спиновых шумов основана на Фурье-преобразовании случайного временного ряда, полученного при электронной регистрации сигнала Фарадеевского вращения как функции времени. Шумы Фарадеевского вращения, возникающие при пропускании линейно

поляризованного света через парамагнетик, показывают резонанс в спектре мощности на частоте прецессии спинов парамагнетика в приложенном магнитном поле. Открытый Александровым и Запасским в 1981 году в парах натрия [54], этот эффект впоследствии нашёл широкое применение для исследования спиновых свойств полупроводниковых структур [55]. В наших работах [56, 57] был обнаружен аналогичный сдвиг электронного спинового резонанса в поле Оверхаузера. Постановка эксперимента была в целом аналогична применявшейся для регистрации наведённого ядерным полем эффекта Фарадея (см. предыдущий раздел), однако для регистрации спектра спинового шума внешнее поле прикладывалось поперёк зондирующего луча света. Первые наблюдения эффекта были сделаны на структурах с микрорезонаторами. При этом накачка ядерных спинов осуществлялась либо выше стоп-зоны Брэгговского зеркала, как в предыдущем разделе, либо резонансно через фотонную моду резонатора. В последнем случае использовался циркулярно или эллиптически поляризованный свет повышенной (по сравнению с режимом зондирования) мощности. Впоследствии аналогичные эксперименты были выполнены и на объёмных слоях n-GaAs при накачке выше края запрещённой зоны. На Рис.4.5 показаны серии спектров спинового шума, зарегистрированных через равные временные интервалы после накачки ядер в продольном поле и включения поперечного магнитного поля. Видно, как смещается спектральный пик спинового шума электронов по мере релаксации ядерной спиновой поляризации. В том случае, когда начальное направление поля Оверхаузера противоположно внешнему полю, наблюдается компенсация полей с обращением Ларморовой частоты в ноль.

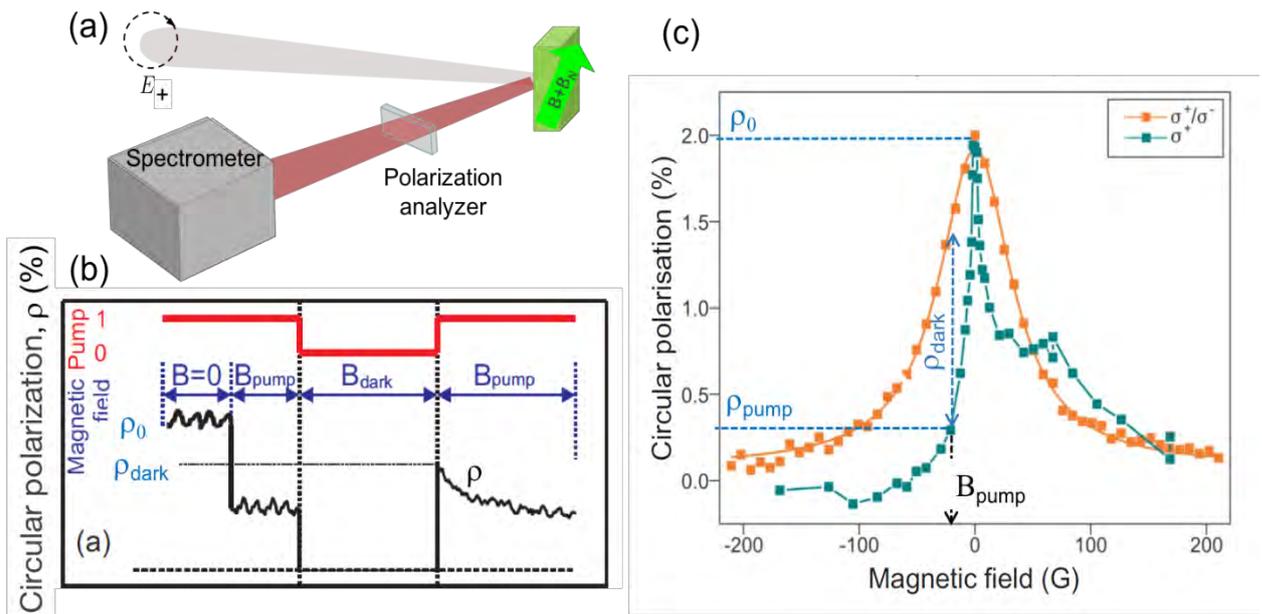


**Рисунок 4.5.** а) схема эксперимента по измерению поля Оверхаузера по спектрам электронного спинового шума. б) эволюция спектра спинового шума со временем: слева – поле Оверхаузера сонаправлено внешнему, справа – противонаправлено. в) резонанс в спектре электронного спинового шума

Достоинством спектроскопии электронного спинового шума как метода измерения ядерной намагниченности является возможность точного количественного измерения поля Оверхаузера по частоте резонанса. К недостаткам можно отнести нечувствительность к знаку суммарного поля, действующего на электронный спин. Кроме того, в случае слаболегированного полупроводника в диэлектрической фазе, измеряется только намагниченность ядер вблизи доноров, в то время как эффект Фарадея способен давать информацию и о ядерных спинах, находящихся далеко от доноров и не контактирующих с электронами.

### 4.3. Фотолюминесценция с тёмными интервалами

Фарадеевское вращение и спиновый шум позволяют регистрировать ядерную спиновую поляризацию в реальном времени, но, как правило, требуют использования структур с микрорезонаторами для достижения необходимой чувствительности. Кроме того, они не являются абсолютно невозмущающими – при повышении мощности зондирующего луча возможна подкачка ядерной поляризации или убыстрение спиновой релаксации ядер. Измерение поля Оверхаузера по эффекту Ханле [13] может быть реализовано на гораздо более широком классе структур. Для исследования свойств ядерной спиновой системы в отсутствие оптического возбуждения применяется метод тёмных интервалов [58] – на первом этапе эксперимента осуществляется накачка ядерных спинов, затем возбуждающий луч перекрывается, на ядерную спиновую систему осуществляется воздействие (например, радиочастотным полем), а на последнем этапе свет снова открывается и фотолюминесценция используется



**Рисунок 4.6** Методика эксперимента по исследованию релаксационных процессов в ядерной спиновой системе методом люминесценции с тёмными интервалами: а) схема установки; б) временная диаграмма эксперимента; в) кривые Ханле в наклонном поле при накачке светом переменной и постоянной циркулярной поляризации. Штриховая стрелка показывает изменение поляризации люминесценции по мере релаксации ядерной намагниченности.

для определения поля Оверхаузера в первый момент после включения света. В наших работах [59- 61] этот метод был адаптирован для исследования спин-решёточной релаксации ядер. С этой целью мы меняли длительность тёмного интервала и измеряли ядерную намагниченность после его окончания как функцию длины тёмного интервала. На Рис.4.6. показана схема такого эксперимента. Образец, помещённый в наклонное магнитное поле, накачивается циркулярно поляризованным светом. В нулевом поле ядерные спины не поляризованы, и степень поляризации люминесценции максимальна и равна  $\rho_0$ . После накачки в поле  $B_{pump}$  электронный спин подвергается воздействию суммарного (внешнее плюс ядерное) поля, и поляризация люминесценции понижается и принимает значение  $\rho_{pump}$ , лежащее на голубой кривой (эффект Ханле при поляризации ядер) на Рис. 4.6.с. Далее накачка выключается, и ядерная спиновая температура релаксирует к температуре решётки. Значение степени поляризации  $\rho_{dark}$  сразу после окончания тёмного интервала показывает, насколько отрелаксировала ядерная спиновая система за то время, пока накачка была выключена. Воспользовавшись формулой для эффекта Ханле [1, 13], легко получить выражение для ядерного поля, соответствующего степени поляризации  $\rho_{dark}$ , которое в случае малого угла наклона внешнего поля к плоскости образца имеет вид

$$B_N \approx B_{1/2} \sqrt{\frac{\rho_0 - \rho_{dark}}{\rho_{dark}}} - B_{pump} \quad (4.2)$$

где  $B_{1/2}$  - полуширина кривой Ханле в отсутствие ядерной поляризации (показанной оранжевой линией на Рис.4.6с).

Изменяя длительность темного интервала, можно построить зависимость ядерной спиновой температуры от времени в процессе релаксации, и измерить время спин-решёточной релаксации. Повторяя этот процесс при различных величинах магнитного поля  $B_{dark}$ , можно исследовать зависимость скорости спин-решёточной релаксации ядер от времени.

#### Основные результаты Главы 4:

1. Экспериментально обнаружен оптический эффект Фарадея, обусловленный полем Оверхаузера динамически поляризованных ядерных спинов в полупроводнике. Помимо теоретически предсказанного Артёмовой и Меркуловым объёмного эффекта, обусловленного расщеплением зоны проводимости, обнаружено также вращение плоскости поляризации в результате Паулиевской блокады оптических переходов в локализованные электронные состояния. Индуцированное полем Оверхаузера Фарадеевское вращение составило основу одного из методов невозмущающего контроля динамики ядерной намагниченности, использованных в данной работе.
2. Предложен и продемонстрирован невозмущающий метод регистрации временной динамики ядерной намагниченности по спектрам спинового шума резидентных электронов.
3. Разработана методика исследования спин-решёточной релаксации ядер на основе метода поляризованной фотолюминесценции при оптической ориентации электронных и ядерных спинов с тёмными интервалами (т.е. с выключением накачки на варьируемый промежуток времени).

*Исследования, составившие содержание данной главы, опубликованы в работах [52,53,56,57,59-61].*

## Глава 5. Оптическое исследование термодинамики ядерной спиновой системы полупроводника в слабых магнитных полях

Как известно с 1950-х годов, после экспериментальных работ Пёрселла и Паунда [62] и теоретических – Абрагама и Проктора [63], спины ядер в твёрдом теле, особенно при низких (гелиевых) температурах, образуют хорошо изолированную от кристаллической решётки систему с огромным числом степеней свободы. Достаточно часто поведение ядерной спиновой системы можно описывать на основе законов термодинамики, что значительно облегчает интерпретацию экспериментальных результатов и позволяет предсказать множество ярких физических эффектов. Ядерная спиновая система в этом случае характеризуется собственной спиновой температурой, которая может на несколько порядков отличаться от температуры решётки и принимать как положительные, так и отрицательные значения. Для применимости концепции спиновой температуры необходимо, чтобы время спин-спиновой релаксации  $T_2$  было значительно короче времени спин-решёточной релаксации  $T_1$ . Однако, является ли это условие достаточным, сказать заранее нельзя – это зависит от характера взаимодействий, в которые вовлечены ядерные спины, и от иерархии времён релаксации различных элементов матрицы плотности ядерной спиновой системы. Поэтому применимость термодинамического описания должна устанавливаться экспериментально для исследуемого материала или структуры.

Динамическая поляризация ядерных спинов в полупроводниках через сверхтонкое взаимодействие с электронами позволяет добиваться значительных степеней ориентации спинов ядер решётки методом оптической накачки [1]. Вызванное ориентацией спинов уменьшение энтропии ядерной спиновой системы приводит, при условии установления межспинового равновесия в магнитном поле, к понижению абсолютной величины ядерной спиновой температуры.

Описание ядерной спиновой системы с помощью спиновой температуры легче всего ввести в случае спинов  $1/2$  в сильном магнитном поле (под сильным здесь понимается такое поле, в котором Зеемановская энергия ядерного магнитного момента намного превосходит энергию его взаимодействия с моментами других ядер). Отношение заселённостей уровней с проекциями спина вверх (магнитный момент против поля) и вниз (магнитный момент вдоль поля) всегда можно представить в виде

$$N_{\uparrow} / N_{\downarrow} = \exp(-\zeta) \quad (5.1)$$

где  $\zeta = (\hbar\gamma_N B) / (k_B \theta_N)$ , где  $\theta_N$  - спиновая температура, которая может быть как положительной, так и отрицательной. В данном случае использование спиновой температуры является формальным приёмом, не приводящим ни к каким новым физическим следствиям. В случае ядер со спином  $I > 1/2$  можно также ввести спиновую температуру, предположив, что соотношение заселённостей (5.1) верно для каждой пары уровней с проекциями спина на внешнее поле, отличающимися на 1. Это предположение оправдано, если между разными парами уровней быстро устанавливается равновесие за счёт флип-флоп переходов. Оно может оказаться и несправедливым, если флип-флоп переходы подавлены квадрупольным взаимодействием, которое делает межуровневое расщепление различным для разных пар уровней. В недавней работе Чеховича и др. [64] относительные заселённости между спиновыми подуровнями ядер в одиночных квантовых точках InGaAs были измерены методом оптически детектируемого магнитного резонанса. Этот эксперимент показал, что данная система в сильном магнитном поле действительно описывается приближением спиновой температуры, несмотря на значительное квадрупольное взаимодействие.

Предсказательная сила концепции спиновой температуры проявляется в полной мере в области слабых магнитных полей, когда Зеемановская энергия сравнима с характерной энергией спин-спиновых взаимодействий, или

меньше её. Основной постулат теории спиновой температуры [63, 65] гласит, что, если выделить внутри ЯСС область размером много больше радиуса спин-спиновых взаимодействий, но много меньше размера всей системы (ансамбль Гиббса), и предоставить её самой себе на время  $t \gg T_2$ , отношение вероятностей найти эту область в квантовых состояниях  $n$  и  $m$  по-прежнему будет равно  $\exp\left(-\frac{\varepsilon_n - \varepsilon_m}{k_B \theta_N}\right)$ , хотя энергии этих уровней  $\varepsilon_n$  и  $\varepsilon_m$  уже определяются не только Зеемановским, но и спин-спиновым взаимодействием.

Наиболее важным экспериментальным следствием этого постулата является то, что намагниченность ЯСС во внешнем магнитном поле следует закону Кюри: она пропорциональна полю и обратно пропорциональна  $\theta_N$ . Действительно, записав матрицу плотности такого ансамбля в высокотемпературном приближении:

$$\rho_N = \frac{\exp\left[-\beta(\hat{H}_{SS} + \hat{H}_Z)\right]}{\text{Tr}\left\{\exp\left[-\beta(\hat{H}_{SS} + \hat{H}_Z)\right]\right\}} \approx 1 - \beta(\hat{H}_{SS} + \hat{H}_Z) \quad (5.2)$$

где  $\beta = (k_B \theta_N)^{-1}$ ,  $\hat{H}_{SS}$  - гамильтониан спин-спиновых взаимодействий,  $\hat{H}_Z = -M_B B$  - гамильтониан Зеемановского взаимодействия,  $\hat{M}_B$  - оператор проекции полного магнитного момента ядер на внешнее поле  $B$ , легко получить

$$\langle M_B \rangle = \text{Tr}(\rho_N \hat{M}_B) \approx \beta B \text{Tr}(\hat{M}_B^2) \quad (5.3)$$

Здесь мы воспользовались тем, что след произведения Зеемановского и дипольного гамильтониана равен нулю, т.к. оно меняет знак при изменении всех спиновых индексов на противоположные.

В слабых магнитных полях, когда Зеемановская энергия много меньше энергии спин-спиновых взаимодействий, спин-спиновый энергетический

резервуар выполняет роль термостата, и  $\theta_N$  не зависит от магнитного поля, (5.3) даёт линейную зависимость намагниченности от поля.

При произвольном магнитном поле намагниченность следует более сложному, но всё же универсальному закону, задаваемому единственным параметром –термодинамическим локальным полем  $B_L$ . Этот закон можно получить из условия энергетического баланса при изменении магнитного поля.

Скорость изменения энергии спиновой системы под действием меняющегося внешнего магнитного поля равна

$$\frac{dE}{dt} = \frac{\partial \langle H \rangle}{\partial t} = -\langle \vec{M} \rangle \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = -\text{Tr}(\hat{M}_B^2) \beta B \frac{\partial B}{\partial t} \quad (5.4)$$

Это равенство справедливо, поскольку внешнее магнитное поле является единственным параметром гамильтониана спиновой системы, явно зависящим от времени [66]. С другой стороны, в соответствии с (5.2), энергия спиновой системы равна

$$E = \langle \hat{H} \rangle = -\beta \text{Tr}(\hat{H}^2) = -\beta (\text{Tr} \hat{H}_Z^2 + \text{Tr} \hat{H}_{SS}^2) = -\beta \text{Tr} M_B^2 (B^2 + B_L^2) \quad (5.5)$$

где  $B_L \equiv \sqrt{(\text{Tr} M_B^2)^{-1} \text{Tr}(\hat{H}_{SS}^2)}$  - по определению, термодинамическое локальное поле, характеризующее силу спин-спиновых взаимодействий. Упрощённо, можно понимать локальное поле как эффективное магнитное поле, действующее на спин ядра со стороны всех остальных ядер. Соответственно, полная производная по времени от энергии, рассматриваемой как функция обратной спиновой температуры  $\beta = (k_B \theta_N)^{-1}$  и внешнего магнитного поля  $B$ , равна

$$\begin{aligned} \frac{dE}{dt} &= \frac{d}{dt} \left[ -\beta(t) \text{Tr} M_B^2 (B_L^2 + B^2(t)) \right] = \\ &= -\text{Tr} M_B^2 \left[ (B_L^2 + B^2(t)) \frac{d\beta(t)}{dt} + 2\beta(t) B(t) \frac{dB(t)}{dt} \right] \end{aligned} \quad (5.6)$$

Приравнивая (5.4) и (5.6), получаем:

$$(B_L^2 + B^2(t)) \frac{d\beta(t)}{dt} + \beta(t) B(t) \frac{dB(t)}{dt} = 0 \quad (5.7)$$

что даёт дифференциальное уравнение для  $\beta$ :

$$\frac{d\beta(t)}{dt} = -\beta(t) \frac{B(t)}{B_L^2 + B^2(t)} \frac{dB(t)}{dt} \quad (5.8)$$

которое с учётом спин-решёточной релаксации должно быть дополнено релаксационным членом вида  $-(\beta - \beta_L)/T_1$ , где  $\beta_L = (k_B T)^{-1}$  - обратная температура решётки, а время спин-решёточной релаксации  $T_1$  зависит, вообще говоря, от магнитного поля (см. главу 6). В экспериментах с оптическим охлаждением ядер в слабых магнитных полях ядерные температуры обычно не превышают нескольких милликельвинов (иначе не получить заметной ядерной намагниченности), а температура решётки составляет несколько кельвинов. Поэтому  $\beta_L$  можно положить равным нулю, и уравнение для  $\beta$  приобретает простой вид:

$$\frac{d\beta(t)}{dt} = -\beta(t) \frac{B(t)}{B_L^2 + B^2(t)} \frac{dB(t)}{dt} - \frac{\beta(t)}{T_1(B)} \quad (5.9)$$

допускающий аналитическое решение. Делением обеих частей уравнения (5.9) на  $\beta$  оно приводится к виду

$$\frac{d \ln \beta(t)}{dt} = -\frac{d}{dt} \ln \sqrt{B_L^2 + B^2(t)} - \frac{1}{T_1(B)} \quad (5.10)$$

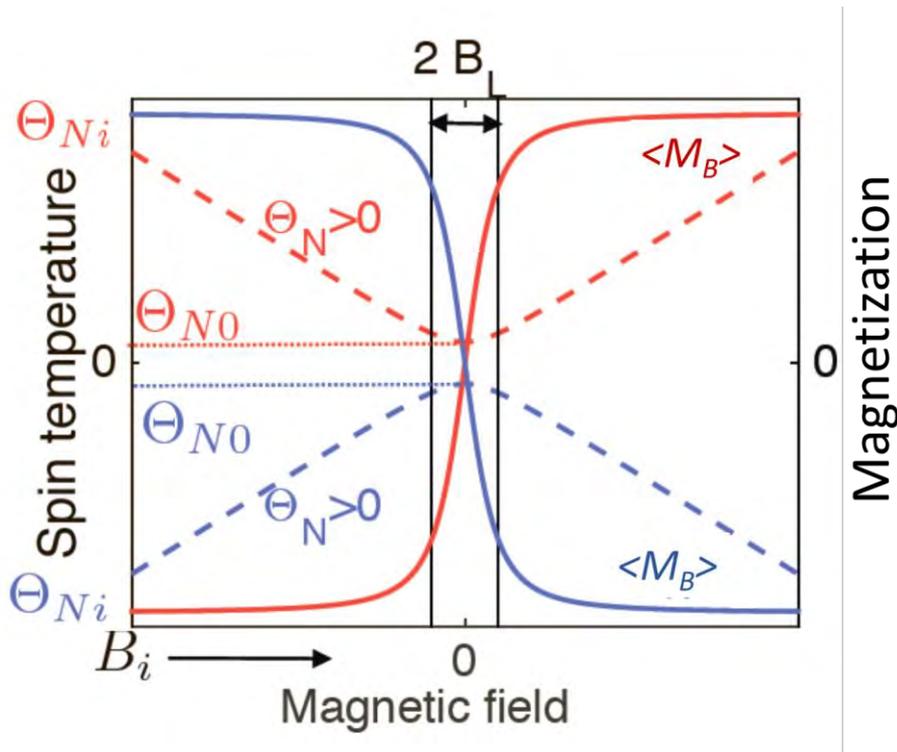
Если в момент времени  $t=0$  магнитное поле было равно  $B_0$ , а обратная спиновая температура -  $\beta_0$ , решение уравнения (5.10) даёт следующую зависимость  $\beta$  от времени:

$$\frac{\beta(t)}{\beta_0} = \sqrt{\frac{B_L^2 + B_0^2}{B_L^2 + B^2(t)}} \exp\left(-\int_0^t T_1^{-1}(B(t')) dt'\right) \quad (5.10)$$

В отсутствие спин-решёточной релаксации (5.10) даёт выражение для обратной спиновой температуры при адиабатическом изменении магнитного поля, получаемое обычно из условия постоянства энтропии в адиабатическом процессе [65]. С учётом (5.3) получаем также выражение для намагниченности:

$$\frac{\langle M_B(t) \rangle}{\langle M_B(0) \rangle} = \frac{B(t)}{B_0} \sqrt{\frac{B_L^2 + B_0^2}{B_L^2 + B^2(t)}} \exp\left(-\int_0^t T_1^{-1}(B(t')) dt'\right) \quad (5.11)$$

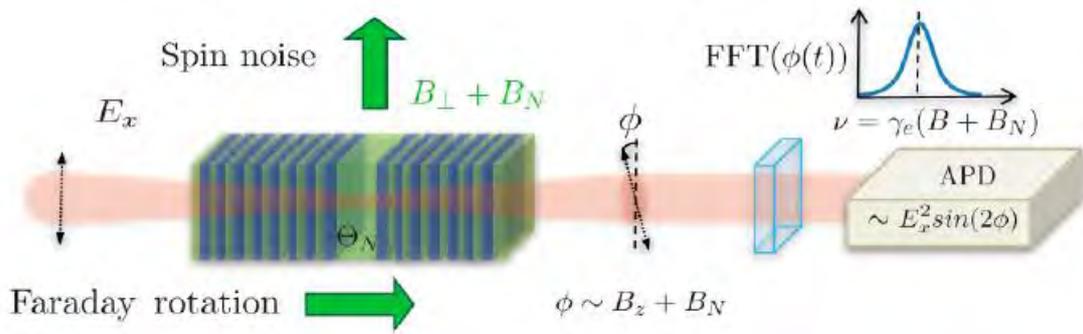
Измерение зависимости намагниченности ядерной спиновой системы от внешнего магнитного поля при его сканировании через область малых (сопоставимых с локальным) полей (см. Рис.5.1) даёт возможность непосредственно проверить применимость теории спиновой температуры к конкретной спиновой системе. Несмотря на кажущуюся простоту, такой эксперимент никогда не выполнялся до нашей работы [67].



**Рисунок 5.1.** Изменение ядерной спиновой температуры  $\theta_N = (k_B \beta)^{-1}$  (штриховые линии) и намагниченности  $\langle M_B \rangle$  (сплошные линии) при адиабатическом сканировании магнитного поля от начальной величины  $B_i$  через ноль, в соответствии с формулами (5.10) и (5.11) в пренебрежении спин-решёточной релаксацией ( $T_1 = \infty$ ).

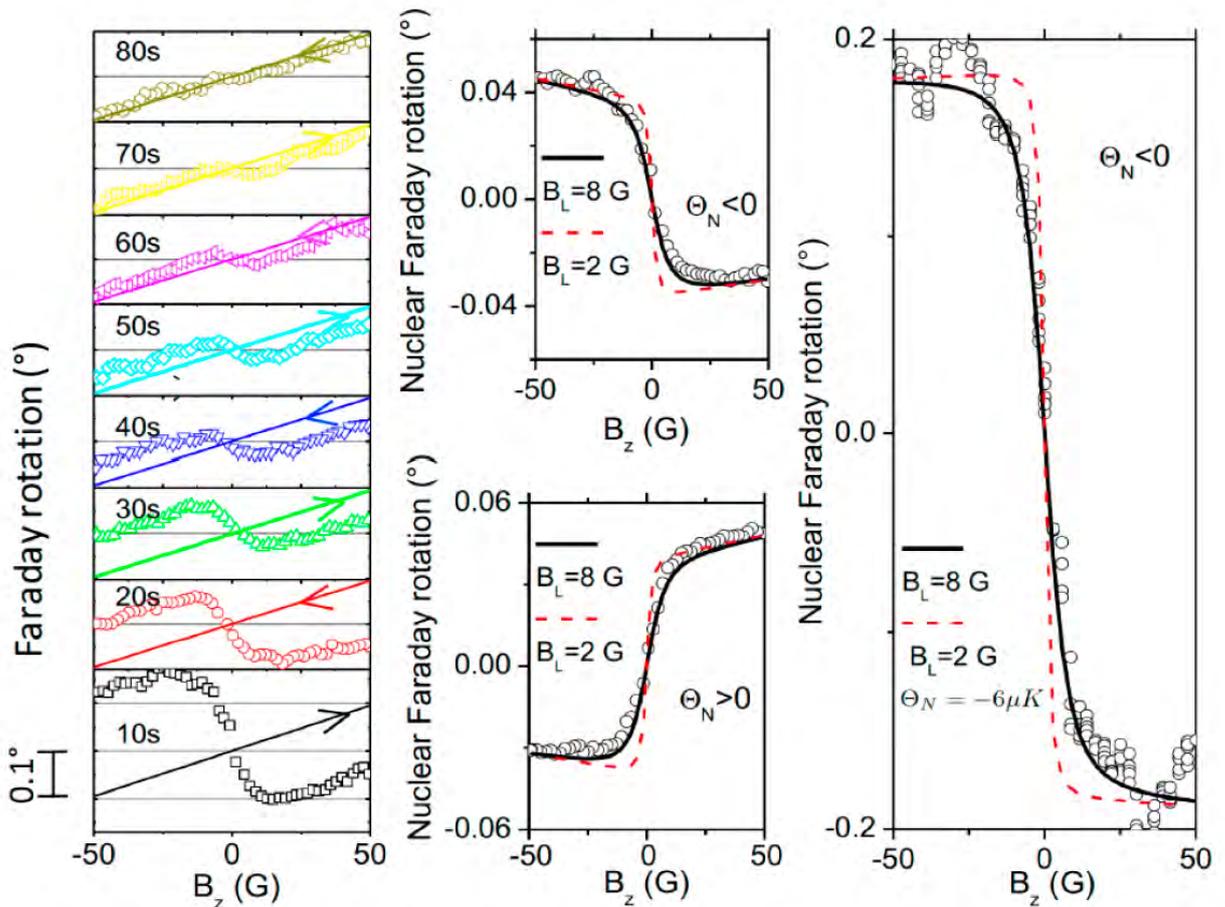
Мы использовали невозмущающие оптические методы измерения ядерной спиновой поляризации, описанные в главе 4 – нерезонансное фарадеевское вращение и спектроскопию спиновых шумов. В качестве образцов использовались  $3\lambda/2$  микрорезонаторы с активным слоем GaAs, легированным кремнием до концентраций электронов  $n_D = 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  (образец А) и  $n_D = 4 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  (образец В), а также 20 мкм эпитаксиальный слой GaAs с  $n_D = 4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  на подложке из GaAs (образец С).

Схема эксперимента изображена на Рис.5.2. Образцы помещались в криостат, поддерживавший температуру 5К. Ядерные спины накачивались циркулярно поляризованным светом с энергией фотона, превышающей ширину запрещённой зоны GaAs, в продольном магнитном поле в 180 Гс. Зондирование производилось линейно поляризованным светом с энергией кванта, соответствующей фотонной моде резонатора и на 20 meV меньшей ширины запрещённой зоны GaAs. На стадии измерения (см. главу 4) осуществлялась линейная развёртка магнитного поля, которое было параллельно зондирующему лучу и перпендикулярно плоскости структуры в случае Фарадеевского вращения, и параллельно плоскости структуры в случае спинового шума, в диапазоне от +50 до -50 Гс.



**Рисунок 5.2.** Схема эксперимента по адиабатическому перемagnetиванию ядерной спиновой системы. Вверху: спектроскопия электронного спинового шума. Внизу: нерезонансное Фарадеевское вращение.

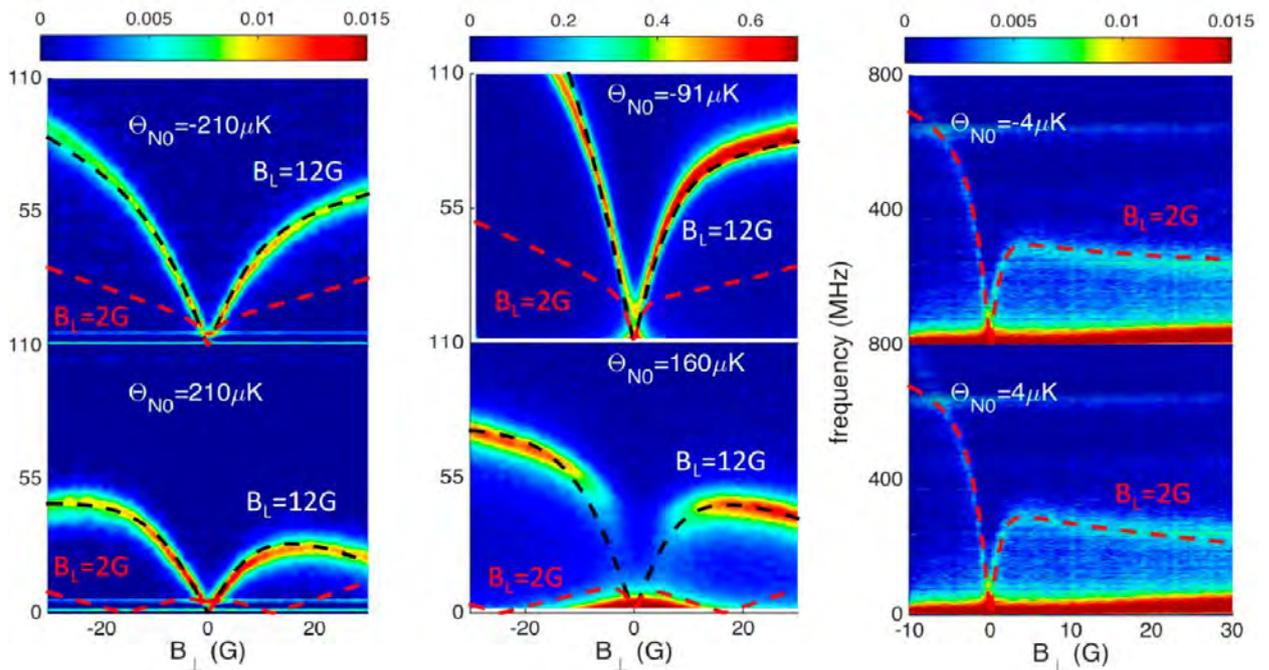
Результаты этих экспериментов показаны на рисунках 5.3 и 5.4.



**Рисунок 5.3.** Слева: зависимость угла Фарадеевского вращения от магнитного поля при его многократном сканировании через ноль. Прямые линии – Фарадеевское вращение, наведённое непосредственно внешним полем. В середине: вклад ядерной намагничённости в Фарадеевское вращение на образце А при положительной (снизу) и отрицательной (сверху) спиновой температуре ядер. Справа: то же на образце В.

Как видно из Рис.5.3 (левая панель), форма кривой перемагничивания, измеренной по Фарадеевскому вращению, сохраняется при многократном сканировании магнитного поля через ноль. Амплитуда ядерной намагниченности уменьшается со временем вследствие спин-решёточной релаксации. На центральной и правой панелях Рис.5.3 показаны кривые перемагничивания, более подробно измеренные на первом проходе магнитного поля через ноль. Экспериментальные зависимости прекрасно описывается формулой (5.11) с единственным подгоночным параметром  $B_L$  (зависимость времени спин-решёточной релаксации  $T_1$  от магнитного поля измерялась отдельно, см. главу 6). Однако значение локального поля  $B_L \approx 8$  Гс, полученно из подгонки, сильно отличается от теоретического значения для арсенида галлия,  $B_L \approx 1.5$  Гс [68]. Для сравнения приведены теоретические кривые для  $B_L \approx 2$  Гаусс; отличие хорошо заметно и намного превышает точность эксперимента.

Результаты измерения кривых перемагничивания методом спинового шума приведены на Рис.5.4.



**Рисунок 5.4.** Эволюция спектров электронного спинового шума (частота отложена по вертикальной оси, спектральная плотность мощности шума показана цветом) при сканировании магнитного поля для образцов А (слева), В (в середине) и С (справа).  $\theta_{N0}$  - ядерная спиновая температура при  $B=0$ .

В этом случае положение резонанса в спектре электронного спинового шума,  $f_0(t) = (\gamma_e / 2\pi) |B + B_N(t)|$ , где  $B_N(t)$  - поле Оверхаузера, также хорошо описывается формулой (5.11). Из-за более долгого времени накопления сигнала, время сканирования магнитного поля было в 10 раз больше, чем в экспериментах по Фарадеевскому вращению. Поэтому влияние спин-решёточной релаксации на измеренные зависимости  $B_N(t)$  очень заметно. Значение локального поля в образцах А и В (структуры с микрорезонатором), полученное из наилучшей подгонки кривых формулой (5.11), равно 12 Гс. Отличие этой величины от измеренной методом Фарадеевского вращения лежит в пределах погрешности эксперимента (определяемой, в основном, необходимостью внесения поправки на спин-решёточную релаксацию). Локальное поле в образце С (объёмный эпитаксиальный слой) оказывается равным 2 Гс, что в пределах погрешности не отличается от теоретического

значения 1.5 Гс, определяемого диполь-дипольным магнитным взаимодействием ядерных спинов.

Этот результат позволяет предположить, что большая величина термодинамического локального поля  $B_L \equiv \sqrt{(\text{Tr } M_B^2)^{-1} \text{Tr}(\hat{H}_{SS}^2)}$ , полученная на структурах с микрорезонаторами, является результатом квадрупольного расщепления ядерных спиновых уровней в результате деформации активного слоя арсенида галлия, встроенного в многослойную гетероструктуру. В этом случае  $\text{Tr}(\hat{H}_{SS}^2) = \text{Tr}(\hat{H}_{dd}^2) + \text{Tr}(\hat{H}_q^2)$ , где  $\hat{H}_{dd}^2$  и  $\hat{H}_q^2$  - гамильтонианы диполь-дипольного и квадрупольного взаимодействий, соответственно (см. главу 1). Используя известные параметры квадрупольного взаимодействия в арсениде галлия [69], можно оценить, что деформация всего в 0.01% приводит к увеличению термодинамического локального поля до 10 Гс [70].

Теплоёмкость ядерной спиновой системы обычно определяется [65] как

$$C_N \equiv -\frac{\partial E}{\partial \beta} = \text{Tr } M_B^2 \cdot (B^2 + B_L^2) \equiv C_Z + C_{SS} \quad (5.12)$$

где  $C_Z$  и  $C_{SS}$  - Зеемановская и спин-спиновая составляющие теплоёмкости соответственно. Наши результаты показывают, что спин-спиновая теплоёмкость, пропорциональная  $B_L^2$ , в структурах с микрорезонаторами увеличилась примерно в 50 раз. Учёт квадрупольного взаимодействия объясняет этот факт, но поднимает вопрос о том, каким образом устанавливается равновесие между Зеемановским и спин-спиновым энергетическими резервуарами в таких структурах. Действительно, квадрупольное взаимодействие лишь расщепляет уровни энергии каждого из ядерных спинов, но не связывает спины разных ядер между собой. Поэтому равновесие в ядерной спиновой системе должно устанавливаться всё равно за счёт флип-флоп переходов, индуцированных диполь-дипольным взаимодействием. Такие переходы подавляются, когда внешнее магнитное

поле больше, чем характерное поле смешивания  $B_{mix}$ , в несколько раз превышающее реальные локальные поля, обусловленные диполь-дипольным взаимодействием [71].

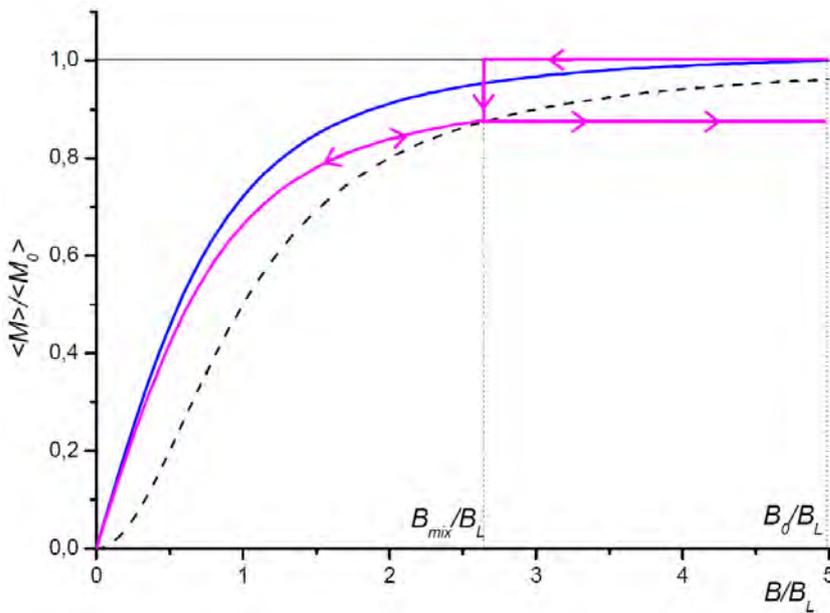
На рисунке 5.5 показана кривая размагничивания с учётом установления равновесия в поле смешивания. Обратную спиновую температуру, устанавливающуюся после смешивания, можно найти из условия баланса энергий. При размагничивании динамически поляризованной ядерной спиновой системы из сильного магнитного поля спин-спиновый резервуар имеет нулевую энергию, а Зеемановская энергия равна  $E_Z(B_{mix}) = -M_0 B_{mix}$ . После установления равновесия между резервуарами полная энергия спиновой системы равна  $E(B_{mix}) = -\beta_{mix} \text{Tr} M_B^2 \cdot (B_{mix}^2 + B_L^2)$ . Приравнивая эти две энергии, получаем обратную спиновую температуру после смешивания

$$\beta_{mix} = \frac{M_0 B_{mix}}{\text{Tr} M_B^2 \cdot (B_{mix}^2 + B_L^2)} \quad (5.13)$$

и соответствующую её намагниченность

$$M_{mix} = M_0 \frac{B_{mix}^2}{B_{mix}^2 + B_L^2} \quad (5.14)$$

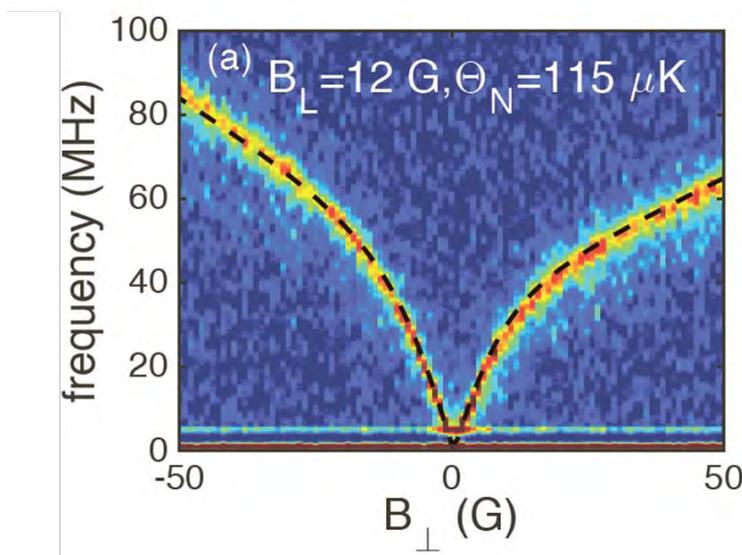
Зависимость  $M_{mix}$  от  $B_{mix}$  показана на Рис.5.5 штриховой кривой. Синяя сплошная линия – кривая адиабатического размагничивания для случая  $B_0 < B_{mix}$ . В случае  $B_0 > B_{mix}$  при уменьшении магнитного поля намагниченность не меняется до  $B = B_{mix}$ , затем скачком снижается до  $M_{mix}$ , и дальше следует по другой адиабатической кривой. Если затем начать увеличивать поле, намагниченность вернётся по фиолетовой кривой к  $M_{mix}$  и, при дальнейшем увеличении поля, останется постоянной.



**Рисунок 5.5.** Изменение намагниченности при прохождении через поле смешивания (фиолетовая кривая) и в случае  $B_{mix} > B_0$  (синяя кривая). Штриховая линия: зависимость  $M_{mix}$  от  $B_{mix}$ .

Для арсенида галлия поле смешивания должно быть порядка 10 Гс. В объёмном GaAs, где термодинамическое локальное поле обусловлено диполь-дипольным взаимодействием, спин-спиновая теплоёмкость в поле 10 Гс мала по сравнению с Зеемановской. Поэтому передаваемая при смешивании энергия тоже мала, и кривая перемагничивания не будет отличаться от адиабатической, задаваемой формулой (5.11). А в структуре с микрорезонатором это не так. Поэтому при размагничивании из  $B_0 = 50\text{ Г}$  можно было ожидать скачка намагниченности, подобного изображённому фиолетовой кривой на Рис.5.5, а при увеличении поля после размагничивания намагниченность не должна была выйти на исходный уровень. Как видно из Рис.5.3 (правая панель), в эксперименте такого не наблюдается. Для проверки был сделан специальный эксперимент, в котором ядерная спиновая система после охлаждения выдерживалась в темноте в течение 90 секунд, для того чтобы успели завершиться переходные процессы, связанные со спиновой диффузией и релаксацией вблизи донорных центров (см. главу 6). Последующее измерение кривой

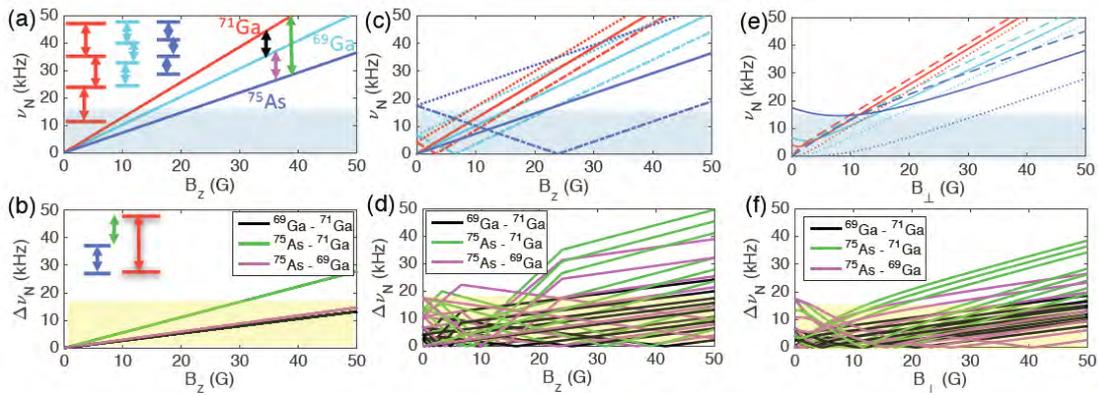
перемагничивания методом спинового шума позволило измерить зависимость  $M(B)$  с точностью до 2% (см. Рис.5.6). При этом особенности, возникающие при прохождении поля смешивания, должны были быть отчётливо видны, однако их не наблюдалось.



**Рисунок 5.6.** Кривая адиабатического перемагничивания, измеренная на образце А с предварительной выдержкой в темноте. Штриховая линия – подгонка по формуле (5.11).

Таким образом, поле смешивания в исследованных структурах с микрорезонаторами превышало 50 Гс. Соответствующее этому полю Зеемановское расщепление ядерных спиновых уровней в 30 раз больше их ширины  $\sim h/T_2$ , обусловленной диполь-дипольным взаимодействием.

Мы предполагаем, что этот удивительный факт объясняется сложным энергетическим спектром ядерной спиновой системы арсенида галлия. Кристаллическая решётка GaAs образована тремя изотопами ( $^{75}\text{As}$ ,  $^{69}\text{Ga}$ ,  $^{71}\text{Ga}$ ), имеющими различные магнитные и квадрупольные моменты. Одновременное приложение деформации и магнитного поля образует лес уровней, между которыми возможны индуцированные диполь-дипольным взаимодействием переходы, как показано на Рис.5.7.



**Рисунок 5.7.** Частоты переходов между ядерными спиновыми уровнями в арсениде галлия в зависимости от магнитного поля. (а, с, е) – в пределах одного ядра, (b, d, f) – между разными изотопами: (а, b) – в отсутствие деформации, (с, d) ось деформации вдоль магнитного поля, (е, f) – ось деформации поперёк магнитного поля. Цветные полосы внизу показывают диапазон разрешённых по энергии переходов ( $\Delta\nu \leq 5/T_2$ ).

Таким образом, тепловое равновесие внутри ядерной спиновой системы GaAs устанавливается в магнитных полях  $B_{mix} > 5B_L$  даже в том случае, когда в результате квадрупольного расщепления ядерных спиновых уровней термодинамическое локальное поле  $B_L$  становится в 6-8 раз больше истинных локальных магнитных полей, действующих на спин ядра со стороны соседних ядерных магнитных моментов. Это даёт возможность исследовать охлаждение и тепловую релаксацию ядерной спиновой системы в структурах с микрорезонаторами, позволяющими эффективно использовать неразрушающие методы измерения ядерной намагниченности, основанные на лазерной поляриметрии.

## Основные результаты главы 5

1. Экспериментально проверены и подтверждены предсказания теории спиновой температуры относительно поведения намагниченности охлаждённой ядерной спиновой системы при сканировании магнитного поля от начальной величины, превышающей термодинамическое локальное поле, с прохождением поля через ноль.

2. Обнаружено, что в гетероструктурах с активным слоем арсенида галлия в микрорезонаторе термодинамическое локальное поле ядерной спиновой системы активного слоя увеличено в 6-8 раз по сравнению с объёмным арсенидом галлия. Это предположительно связано с квадрупольным расщеплением ядерных спиновых уровней в результате деформации слоя GaAs в гетероструктуре.
3. Экспериментально показано, что смешивание Зеемановского и спин-спиновых энергетических резервуаров ядерной спиновой системы слоя арсенида галлия в микрорезонаторе происходит во внешних магнитных полях, превышающих термодинамическое локальное поле не менее, чем в 5 раз. Это позволяет использовать такие структуры для исследования термодинамики и спин-решёточной релаксации ядерной спиновой системы невозмущающими оптическими методами.

*Исследования, составившие содержание данной главы, опубликованы в работе [67].*

## **Глава 6. Спин-решёточная релаксация ядерной спиновой системы в слабых магнитных полях**

Как показано в главе 5, зависимость ядерной спиновой поляризации от магнитного поля хорошо описывается теорией спиновой температуры не только в объёмном GaAs, но и в слоях GaAs, включённых в гетероструктуры, в том числе структуры с микрорезонаторами. Это позволяет использовать широкий набор структур на основе арсенида галлия в качестве модельных для исследования спин-решёточной релаксации ядер в полупроводниках, которая фактически является релаксацией спиновой температуры к температуре кристаллической решётки, т.е. отогревом ядерной спиновой системы. Использование микрорезонаторов даёт возможность применить, в том числе, невозмущающие оптические методы измерения ядерной намагниченности на основе лазерной поляриметрии, описанные в главе 4, которые позволяют отслеживать динамику ядерной спиновой системы в реальном времени. В данной главе приводятся результаты экспериментальных исследований отогрева ядерной спиновой системы в арсениде галлия n-типа (в широком диапазоне концентраций доноров – от диэлектрической до металлической фазы [59 – 61, 72]) и p-типа [73], и теоретическая интерпретация результатов этих экспериментов.

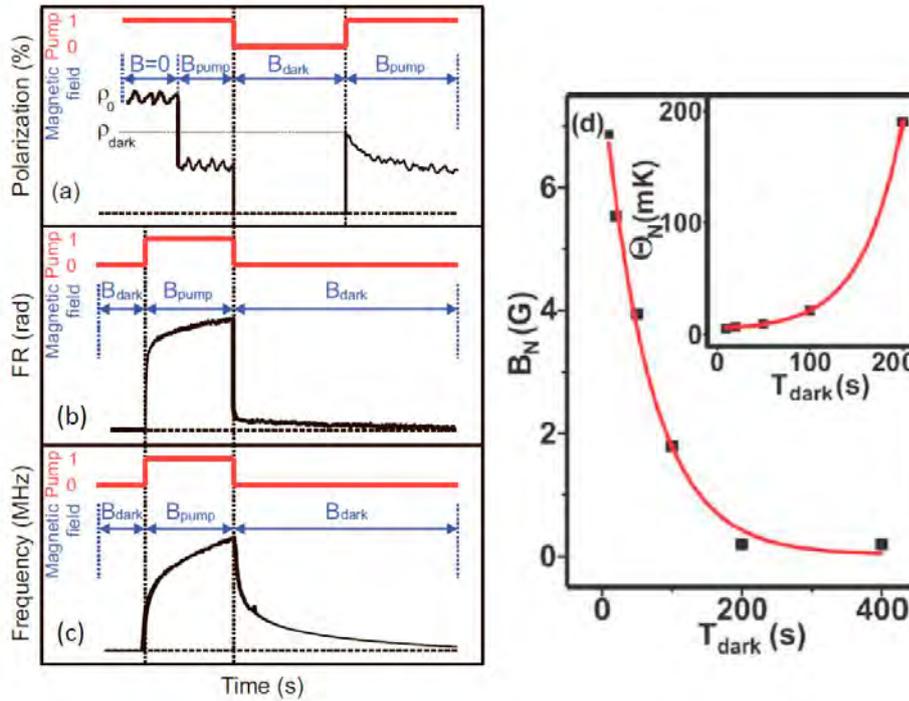
### **6.1. Экспериментальные исследования спин-решёточной релаксации ядер в GaAs**

Набор исследованных структур представлен в Таблице 6.1. Он включал как объёмные (толщиной 20 мкм и более) эпитаксиальные слои GaAs n- и p-типа, так и микроструктуры (слои толщиной 0.37 мкм в микрорезонаторах и 1 мкм в гетероструктуре с барьерами AlGaAs). Исследовалась также структура с широкой (19.7 нм) нелегированной квантовой ямой.

Образец	A	B	C	D	E	F	G	H	I
тип	MC	MC	Bulk	Bulk	MC	DHS	Bulk	Bulk	QW
d, $\mu\text{m}$	0.37	0.37	200	20	0.37	1	20	20	0.02
n, $10^{15}\text{cm}^{-3}$	40	20	6	4	2	90	-----	-----	-----
p, $10^{15}\text{cm}^{-3}$	-----	-----	-----	-----	-----	-----	26	60	-----
метод	SN	FR	PL	SN, PL	FR, SN	PL	PL	PL	PL

**Таблица 6.1.** Параметры образцов. Тип структуры: MC – микрорезонатор, bulk – объёмный эпитаксиальный слой, DHS – двойная гетероструктура, QW – квантовая яма. d – толщина слоя. n – концентрация резидентных электронов. p – концентрация резидентных дырок. Метод исследования: SN – спиновый шум, FR – Фарадеевское вращение, PL – фотолюминесценция с тёмными интервалами.

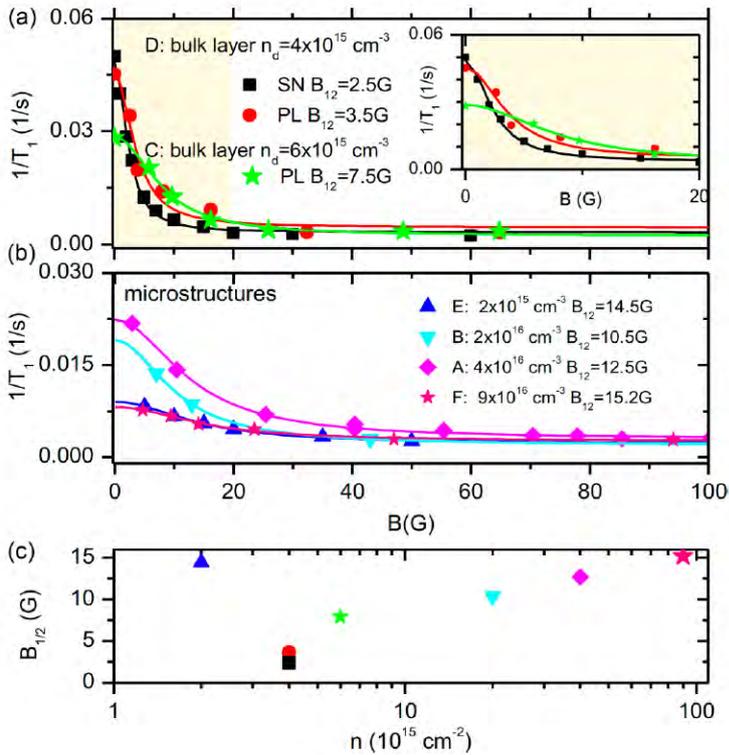
Для исследования спин-решёточной релаксации ядер в отсутствие оптического возбуждения, на первом этапе эксперимента производилась оптическая накачка в продольном по отношению к возбуждающему свету магнитном поле, а затем, после выключения накачки, производились измерения зависимости ядерной спиновой температуры от времени одним из методов, описанных в главе 4 (см. Рис.6.1).



**Рисунок 6.1.** Временные диаграммы экспериментов по исследованию ядерной спин-решеточной релаксации методами (а) фотолюминесценции с тёмными интервалами, (б) Фарадеевского вращения и (с) спинового шума. d) пример измеренной временной зависимости ядерного поля и спиновой температуры (на вставке). В случае (а) ядерное поле измеряется в поле  $B_{pump}$  в зависимости от длительности предшествующего тёмного интервала (когда поле равно  $B_{dark}$ ), в случаях (б) и (с) – непосредственно в поле  $B_{dark}$ .

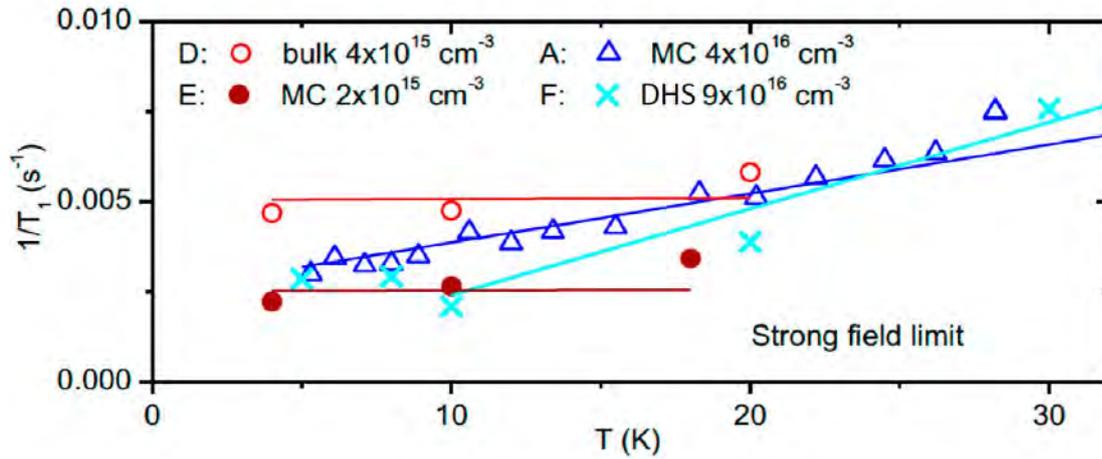
Измерения проводились при различных магнитных полях  $B_{dark}$  и температурах.

Результаты этих экспериментов представлены на рисунках 6.2-6.5. Рисунок 6.2 показывает зависимости скорости релаксации  $1/T_1$  от магнитного поля в диапазоне от 0 до 100 Гс при температуре 4-5К для различных структур n-типа. Наблюдается подавление релаксации в характерных полях  $B_{1/2} < 20$  Гс примерно на порядок величины по сравнению с нулевым полем, с выходом на постоянный уровень, соответствующий  $T_1 \approx 200$  с в более сильных полях. Характерные поля подавления релаксации в микроструктурах оказываются в несколько раз больше, чем в объёмных слоях.



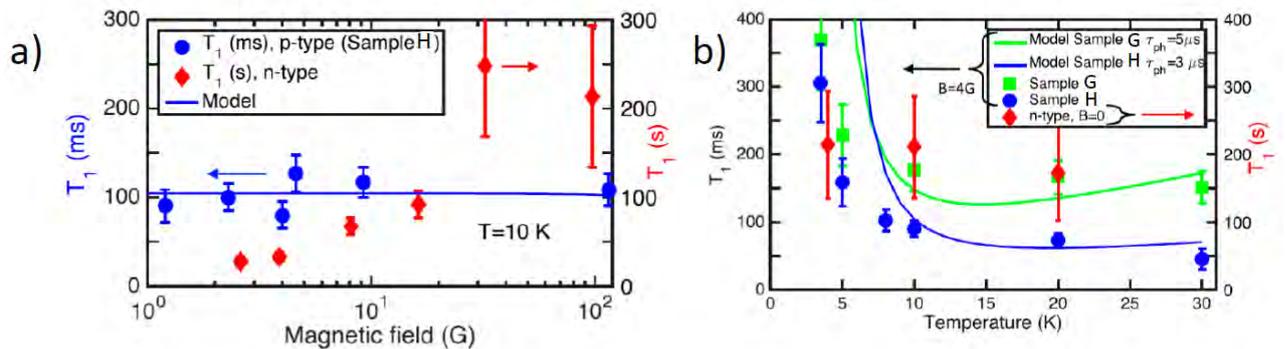
**Рисунок 6.2.** Зависимость  $1/T_1$  от магнитного поля для структур со слоями GaAs n-типа при температуре 4-5К. а) объёмные слои; на вставке – более подробно для диапазона 0-20 Гс. б) микроструктуры (микрорезонаторы и двойная гетероструктура). в) полуширина зависимостей (подгонка лоренцианом на подставке) как функция концентрации доноров.

На Рис.6.3 показаны зависимости скорости спин-решёточной релаксации от температуры в магнитных полях в диапазоне 150-1000 Гс, когда релаксация уже не зависит от поля. Здесь видно различие между диэлектрическими и металлическими образцами: в диэлектрических температурной зависимости не наблюдается, в то время как в металлических с повышением температуры релаксация выходит на закон Корринги (скорость релаксации пропорциональна температуре).



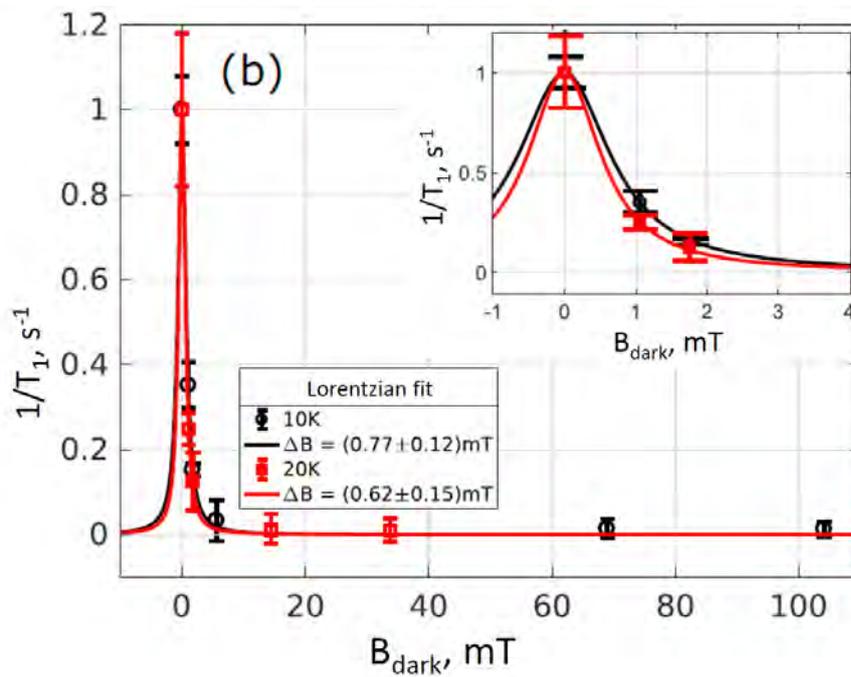
**Рисунок 6.3.** Зависимость скорости релаксации от температуры в полях 150-1000 Гс для образцов A, D, E, F.

На Рис.6.4 приведены температурные и магнитопольевые зависимости времени спин-решёточной релаксации в образцах р-типа, в сопоставлении с аналогичными зависимостями в GaAs n-типа. Основное отличие – на 3 порядка более короткое время  $T_1$ . Кроме того, отсутствует какая-либо зависимость от магнитного поля в диапазоне 0-100 Гс, и, наоборот, наблюдается достаточно резкая температурная зависимость ниже 10 К, отсутствующая в GaAs n-типа.



**Рисунок 6.4.**  $T_1$  как функция магнитного поля (a) и температуры (b) в GaAs p-типа (левая ось, миллисекунды) и n-типа (правая ось, секунды).

Наконец, на Рис.6.5 приведены результаты для нелегированной квантовой ямы.



**Рисунок 6.5.** Зависимость скорости ядерной спин-решёточной релаксации от магнитного поля для образца *I* (нелегированная квантовая яма шириной 19.7 нм).

Здесь зависимости скорости релаксации от температуры и магнитного поля качественно схожи с таковыми для диэлектрического n-GaAs, но изменение  $T_1$  с ростом магнитного поля в области слабых полей более сильное:  $T_1$  возрастает на два порядка от 1 секунды в нулевом поле до 200 секунд в поле 1000 Гс, с полушириной магнитополевой зависимости в 6-7 Гс.

## 6.2. Основные механизмы спин-решёточной релаксации ядер в диэлектрическом GaAs

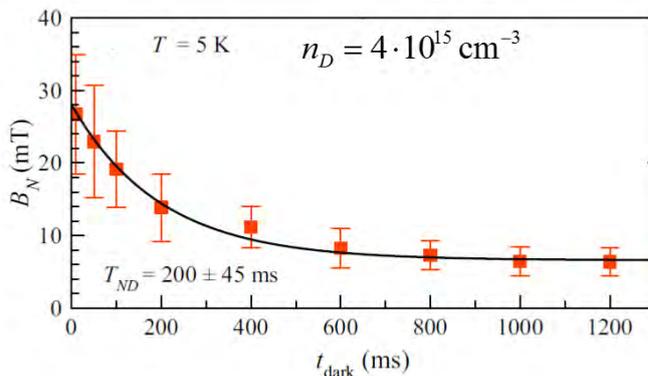
Описанные выше особенности спин-решёточной релаксации в различных типах полупроводниковых структур объясняются спецификой динамической поляризации ядер при оптической накачке и вкладом нескольких релаксационных механизмов.

Как показано в [1], динамическая поляризация ядерных спинов происходит с наибольшей эффективностью через сверхтонкое взаимодействие с локализованными электронами. В диэлектрической фазе объёмных полупроводников это практически единственный механизм динамической поляризации, так как поляризация ядерных спинов свободными

фотовозбуждёнными электронами уступает ему по эффективности на несколько порядков величины. Отдалённые от доноров ядра поляризуются путём спиновой диффузии [49, 50], характеризуемой коэффициентом диффузии  $D_N \approx 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$  [32]. Этот процесс, занимающий сотни секунд, был исследован применительно к оптической ориентации в полупроводниках Паже [32] и Калевичем и др. [74]. В наших экспериментах он проявлялся как медленное нарастание сигнала Фарадеевского вращения на Рис.6.1(b) и центральной частоты электронного резонанса в спектре спинового шума на Рис.6.1(c). После выключения накачки релаксация ядерной намагниченности идёт в обратном порядке, за счёт спиновой диффузии к донорам, играющим роль «центров-убийц». Как показано Хуцишвили [49] и Де Женом [50], скорость релаксации, определяемая таким процессом, равна

$$T_D^{-1} \approx 4\pi D_N n_D a_B \quad (6.1)$$

что, при  $n_D = 4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ , даёт  $T_D \approx 200$  секунд, в согласии с экспериментально измеренными временами для магнитных полей, превышающих 50 Гс. Диффузионной стадии предшествует быстрая релаксация ядерной намагниченности в пределах Боровского радиуса донора. Этот процесс также удаётся зарегистрировать экспериментально, если сократить длительность импульса накачки (Рис.6.1(a)) и менять длительность тёмного интервала в субсекундном диапазоне времён [75]. Результат такого эксперимента показан на Рис. 6.6.



**Рисунок 6.6.** Начальная стадия спин-решёточной релаксации в диэлектрическом n-GaAs: релаксация ядерных спинов, контактирующих с локализованным на доноре электроном [75].

Как видно из Рис.6.6, ядерная намагниченность спадает с характерным временем 200 миллисекунд и выходит на квазипостоянный уровень, отражающий поляризацию объёмных ядер. При длительной накачке поляризация объёмных ядер многократно возрастает за счёт спиновой диффузии и определяет длительную (сотни секунд) динамику спада ядерного поля, показанную на Рис.6.1(d).

Легко проверить, что измеренное время  $T_{ND} \approx 200 \text{ ms}$  действительно соответствует сверхтонкой релаксации ядер, контактирующих с локализованным электроном. Скорость релаксации ядерного спина под действием флуктуирующего поля Найта  $B_e$  равна [1]

$$T_{1e}^{-1} \approx \langle \gamma_N^2 \rangle \langle B_e^2 \rangle \tau_c \quad (6.2)$$

Подставляя сюда усреднённое по водородоподобной волновой функции связанного на доноре электрона поле Найта  $\sim 20 \text{ Гс}$ , получаем оценку времени корреляции электронного спина  $\tau_c \approx 400 \text{ ps}$ , совпадающую с определённой из исследования электронной спиновой релаксации для  $n_D = 4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  (см. главу 3). Таким образом, для магнитных полей  $B > 50 \text{ Гс}$  наши результаты подтверждают предложенную Паже модель сверхтонкой релаксации на донорах, ограниченной спиновой диффузией.

Тем более удивителен тот факт, что ни релаксация (отогрев) ядерной спиновой системы в полях порядка локальных в n-GaAs, ни вообще спин-решёточная релаксация ядер в p-GaAs этой моделью не описываются ни при каких разумных допущениях.

Действительно, из входящих в формулу Хуцишвили-Де Жена (6.1) параметров только коэффициент диффузии может зависеть от магнитного поля, но эта зависимость не настолько сильная, чтобы объяснить рост скорости релаксации на порядок, и тем более на два порядка, как на Рис.6.5. Субсекундный временной масштаб спин-решёточной релаксации в p-GaAs вообще не вписывается в эту картину, так как в материале p-типа отсутствуют резидентные электроны.

Как будет показано ниже, эти противоречия разрешаются учётом вклада квадрупольного взаимодействия в спин-решёточную релаксацию ядер.

### 6.2.1. Квадрупольный отогрев ядерной спиновой системы флуктуирующими электрическими полями.

В магнитных полях, меньших поля смешивания ( $B_{mix} \sim 50$  Гс, см. главу 4), Зеемановский резервуар находится в равновесии со спин-спиновым и, как одно из следствий, намагниченность ядерной спиновой системы полностью определяется её спиновой температурой и внешним полем. В этом режиме скорость спин-решёточной релаксации является фактически скоростью отогрева ядерной спиновой системы. Если скорость поступления энергии от флуктуирующих электрических полей равна  $\mathfrak{S}_Q$ , скорость отогрева определяется формулой

$$\frac{1}{T_Q} = \frac{\mathfrak{S}_Q}{C_N \beta} \quad (6.3)$$

где  $C_N = \text{Tr } M_B^2 \cdot (B^2 + B_L^2) = \langle \gamma_N^2 \rangle \frac{I(I+1)}{3} (B^2 + B_L^2)$  - теплоёмкость ядерной спиновой системы (см. главу 5).

Рассмотрим небольшой объём  $V$ , внутри которого флуктуирующее электрическое поле  $E_j$  можно считать пространственно однородным. Как следует из формулы (1.13) главы 1, в GaAs и других кубических пьезоэлектрических кристаллах полный гамильтониан квадрупольного взаимодействия всех ядер внутри этого объёма может быть записан как

$$\hat{H}_Q = -V (\vec{E}_j \cdot \vec{P}_Q) \quad (6.4)$$

где  $\vec{P}_Q$  - диэлектрическая поляризация, связанная с квадрупольным моментом.

Компоненты  $\vec{P}_Q$  определяются как

$$P_Q^i = \frac{1}{V} \sum_{j,k} \beta_Q \nu_{jk,i} \sum_n (Q_{jk})_n \quad (6.5)$$

(см. формулы 1.10 -1.14 главы 1). Здесь  $n$  нумерует ядра в пределах объёма  $V$ .

В приближении линейного отклика спектральная плотность поглощённой мощности на частоте  $\omega$  равна

$$\mathfrak{S}_Q(\omega) = \frac{\omega}{2} \alpha''(\omega) E_f^2(\omega) \quad (6.7)$$

где  $\alpha''(\omega)$  - мнимая часть обобщённой восприимчивости. В соответствии со флуктуационно-диссипативной теоремой [66]  $\alpha''(\omega)$  может быть выражена через спектральную плотность мощности флуктуаций  $\vec{P}_Q$ :

$$\alpha''(\omega) = V \frac{\omega \beta}{2} \langle \delta P_Q^2(\omega) \rangle \quad (6.8)$$

Чтобы рассчитать полный поток энергии в ядерную спиновую систему,  $\mathfrak{S}_Q = \int_{-\infty}^{\infty} \mathfrak{S}_Q(\omega) d\omega$ , необходимо знать спектры флуктуаций как электрического поля, так и квадрупольной поляризации. В темноте электрические поля флуктуируют из-за флуктуаций заряда в результате тепловой активации электронов с доноров в зону проводимости и в результате прыжков с заполненных на пустые доноры. Рассмотрим простейший случай флуктуаций заряда, характеризуемых единственным временем корреляции  $\tau_c^c$ , имеющим смысл среднего времени заполнения пустого донора захватом свободного электрона из зоны или прыжком с соседнего донора. В этом случае временная корреляционная функция электрического поля может быть записана как

$$\langle E_f(0) E_f(t) \rangle = L E_a^2 \exp(-t / \tau_c^c) \quad (6.9)$$

где  $E_a$  - электрическое поле на расстоянии Боровского радиуса от заряженного донора, а безразмерный коэффициент  $L$  учитывает усреднение электрических полей случайно расположенных заряженных центров. Для примесной зоны объёмного полупроводника n-типа  $L \approx 2.5 a_B^3 n_D^+$ . Произведя преобразование Фурье от корреляционной функции (6.9), получаем спектр мощности флуктуаций электрического поля:

$$\langle E_f^2(\omega) \rangle = L E_a^2 \frac{2\tau_c^c}{1 + (\omega\tau_c^c)^2} \quad (6.10)$$

Для полной поглощаемой мощности из формул (6.7), (6.8) и (6.10) получаем следующее выражение:

$$\mathfrak{S}_Q = \frac{V\beta}{2\tau_c^c} LE_a^2 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{(\omega\tau_c^c)^2}{1+(\omega\tau_c^c)^2} \langle \delta P_Q^2(\omega) \rangle d\omega \quad (6.11)$$

Хотя точная форма зависимости  $\langle \delta P_Q^2(\omega) \rangle$  неизвестна, она сосредоточена в основном в частотном диапазоне  $|\omega| < \gamma_N \sqrt{B_L^2 + B^2}$ . Поэтому, в том случае, если  $\tau_c^c \gg T_2 \sim 1/(\gamma_N B_L)$ , можно заменить дробь под интегралом на единицу, что даёт

$$\mathfrak{S}_Q = \frac{\pi V\beta}{\tau_c^c} LE_a^2 \langle \delta P_Q^2 \rangle \quad (6.12)$$

где  $\langle \delta P_Q^2 \rangle$  - полный средний квадрат флуктуации квадрупольной поляризации, который может быть найден путём взятия следа от правой части формулы (6.5). Подставив (6.12) в формулу (6.3), получаем окончательное выражение для скорости отогрева ядерной спиновой системы медленными (по сравнению с  $T_2$ ) флуктуациями электрического заряда в примесной зоне:

$$1/T_Q = \frac{\pi L (eQ\beta_Q E_a)^2}{5(\hbar\gamma_N)^2 (B^2 + B_L^2) \tau_c^c} \frac{4I(I+1) - 3}{[4I(2I-1)]^2} \quad (6.13)$$

Как видно из (6.13), скорость квадрупольного отогрева максимальна в нулевом внешнем магнитном поле и спадает квадратично по полю при  $B^2 \gg B_L^2$ . Её величина в нулевом поле определяется коэффициентом  $L$ , отражающим пространственное распределение флуктуирующих зарядов, и их временем корреляции  $\tau_c^c$ .

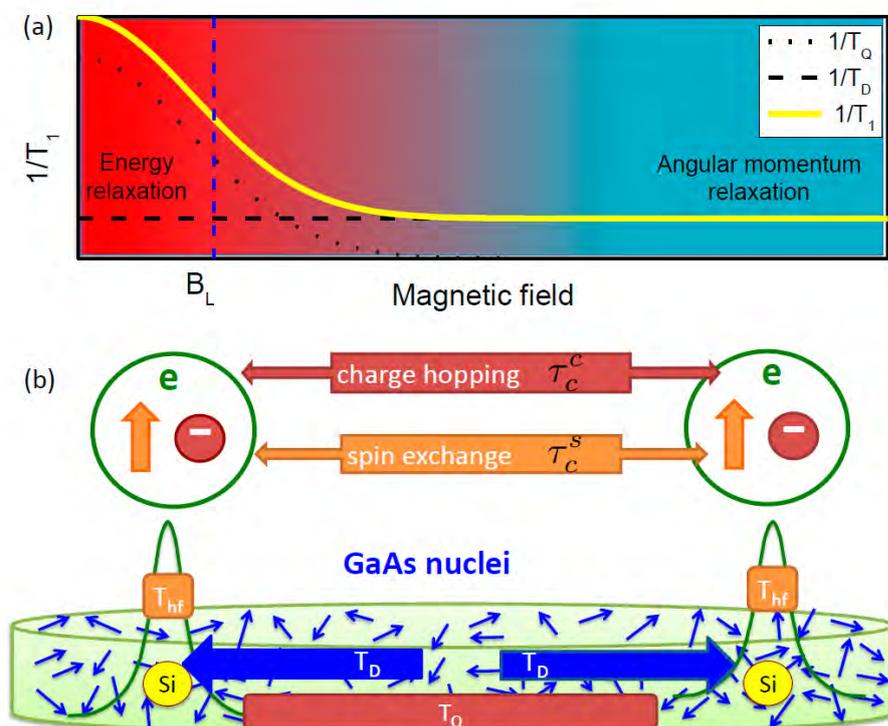
Если принять  $0.1n_D$  в качестве разумной оценки для концентрации заряженных доноров (степень компенсации 10%), наилучшее согласие с экспериментальными зависимостями скорости отогрева от магнитного поля (Рис.6.2) для диэлектрических образцов получается при  $\tau_c^c \approx 0.9 \text{ ms}$ , что *a posteriori* подтверждает предположение о медленном по сравнению с  $T_2$  временном масштабе флуктуаций заряда. Такие долгие времена корреляции характерны для крупномасштабных флуктуаций заряда [76], которые как раз и требуются для

создания переменных электрических полей, захватывающих все ядра в объёме кристалла.

Различие характерных полей подавления квадрупольной релаксации в микроструктурах и объёмных слоях объясняется обнаруженным нами (см. главу 5) увеличением локального поля в микроструктурах за счёт статического квадрупольного расщепления ядерных спиновых уровней, обусловленного присутствующей в таких структурах небольшой деформацией.

В образце I (нелегированная квантовая яма) высокая скорость отогрева в слабых полях объясняется, по всей видимости, крупномасштабными флуктуациями электрического поля, создаваемыми заряженными примесями или дефектами в барьерах. Это подтверждается тем, что в этой структуре время нарастания ядерной поляризации при накачке оказывается на два порядка длиннее, чем время её релаксации в темноте. Такое парадоксальное поведение, противоположное тому, что обычно наблюдается в объёмном арсениде галлия, можно объяснить только экранированием флуктуирующих электрических полей фотовозбуждёнными носителями заряда.

Различные вклады в спин-решёточную релаксацию в n-GaAs схематически показаны на Рис.6.7.



**Рисунок 6.7.** а) Переход от релаксации углового момента к релаксации энергии как основному компоненту спин-решёточной релаксации ядер при снижении магнитного поля до величин, сопоставимых с локальными полями спин-спиновых взаимодействий. б) Основные механизмы спин-решёточной релаксации в n-GaAs: ограниченная диффузией сверхтонкая релаксация при  $B^2 \gg B_L^2$  и квадрупольный отогрев в слабых магнитных полях.

### **6.2.2. Особенности динамической поляризации и релаксации ядерных спинов в диэлектрическом p-GaAs.**

Основным отличием динамики спин-решёточной релаксации в диэлектрическом арсениде галлия p-типа от того, что наблюдается в различных структурах n-GaAs, является полное отсутствие медленной компоненты ядерной намагниченности или спиновой температуры, меняющейся на масштабе десятков или сотен секунд. Как накачка, так и релаксация ядерного спина происходят за времена порядка 100 миллисекунд. Кроме того, скорость релаксации не зависит от магнитного поля и резко падает с понижением температуры при температурах порядка 5К и ниже (Рис.6.4).

Субсекундные времена релаксации показывают, что спиновая диффузия не принимает участия в формировании и распаде ядерной намагниченности: длина ядерной спиновой диффузии за время 100 ns составляет всего 1 нанометр. Следовательно, ядерная спиновая поляризация релаксирует в том же месте, где она была создана накачкой. Хотя сверхтонкое взаимодействие со связанными на акцепторах дырками может приводить к динамической поляризации ядерных спинов [77], измеренные на образцах G и H кривые Ханле однозначно указывают на отсутствие оптической ориентации дырок и чисто электронную природу наблюдаемых проявлений взаимодействия спинов фотовозбуждённых носителей с ядрами. Отсюда следует, что динамическая поляризация ядер происходит обычным путём, через взаимодействие с локализованными электронами [1].

Отсутствие спиновой диффузии в процессе накачки в p-GaAs можно объяснить на основе модели, предложенной Паже, Аманом и Корбом [33]. Поскольку в

полупроводнике р-типа в равновесии донорные центры не заполнены электронами, динамическая поляризация ядер осуществляется фотовозбуждёнными электронами, захваченными на доноры. Скорость динамической поляризации пропорциональна электронной плотности, экспоненциально спадающей с удалением от донора. Захват и рекомбинация фотовозбуждённых электронов приводит к возникновению зависящих от времени электрических полей вокруг доноров, индуцирующих квадрупольный отогрев ядерной спиновой системы. Кулоновское поле, в отличие от электронной плотности, медленно спадает с расстоянием. В результате ядерные спины поляризуются только непосредственно в окрестности донорного центра, в пределах «квадрупольного радиуса»  $a_D \approx 0.4a_B$  [33].

Механизм Паже-Амана-Корба, основанный на перезарядке донора фотовозбуждёнными электронами, работает только в условиях оптической накачки. Что же вызывает релаксацию ядерной спиновой поляризации в темноте, когда доноры пусты? Скорее всего, это квадрупольная релаксация, индуцированная электрическим полем заряженного акцептора, расположенного рядом с донором. Заряженные акцепторные центры образуются в частично компенсированном полупроводнике р-типа в результате рекомбинации одной из связанных на акцепторах дырок с электроном, сошедшим с донора. При нулевой температуре отрицательный заряд, соответствующий отсутствию дырки, с 97.4% вероятностью располагается на ближайшем к донору акцепторе [37]. При конечной температуре возможны прыжки дырок с более отдалённых акцепторов на этот заряженный центр, приводящие к его нейтрализации и резкому уменьшению электрического поля. Временная зависимость электрического поля в окрестности донора в этом случае имеет вид телеграфного шума.

Рассмотрим для простоты прыжки заряда между ближайшим к заряженному донору акцептором (1) и другим акцептором (2), находящимся на большем расстоянии. Прыжки происходят в случайные моменты времени, причем среднее время непрерывного пребывания в состоянии (1) равно  $\tau_1$ , а в состоянии (2) -  $\tau_2$ . При этом электрическое поле на ядре в окрестностях донора переключается

между двумя значениями. Обозначим их  $\vec{E}_1$  и  $\vec{E}_2$ . Тогда среднее значение электрического поля на ядре будет равно

$$\langle \vec{E} \rangle = \frac{\vec{E}_1 \tau_1 + \vec{E}_2 \tau_2}{\tau_1 + \tau_2} \quad (6.13)$$

а его среднеквадратичная флуктуация

$$\delta E^2 = \left\langle \left( \vec{E} - \langle \vec{E} \rangle \right)^2 \right\rangle = (\vec{E}_1 - \vec{E}_2)^2 \frac{\tau_1 \tau_2}{(\tau_1 + \tau_2)^2} \quad (6.14)$$

Автокорреляционная функция флуктуирующей части электрического поля  $\vec{E}_f = \vec{E} - \langle \vec{E} \rangle$ , представляющей собой асимметричный телеграфный шум, определяется кратчайшим из двух времён:

$$\langle E_f(0) E_f(t) \rangle = (\vec{E}_1 - \vec{E}_2)^2 \frac{\tau_1 \tau_2}{(\tau_1 + \tau_2)^2} \exp\left(-t \left( \frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2} \right)\right) \quad (6.15)$$

а её Фурье-образ, дающий спектральную плотность флуктуаций, равен

$$\delta E_\omega^2 = (\vec{E}_1 - \vec{E}_2)^2 \frac{(\tau_1 \tau_2)^2}{(\tau_1 + \tau_2)^3} \frac{1}{1 + \omega^2 (\tau_1 \tau_2)^2 / (\tau_1 + \tau_2)^2} \quad (6.16)$$

Отсутствие магнитополевой зависимости  $T_1$  заставляет предположить, что спектр частот флуктуирующих полей много шире частотного диапазона ядерных спиновых флуктуаций. Таким образом, нас интересует область низких частот  $\omega \ll \frac{\tau_1 + \tau_2}{\tau_1 \tau_2}$ , в которой формула (6.16) упрощается:

$$\delta E_\omega^2 = (\vec{E}_1 - \vec{E}_2)^2 \frac{(\tau_1 \tau_2)^2}{(\tau_1 + \tau_2)^3} = \delta E^2 \tau_c \quad (6.17)$$

где  $\tau_c = \frac{\tau_1 \tau_2}{\tau_1 + \tau_2}$ , а  $\delta E^2$  даётся формулой (6.14).

Времена  $\tau_1$  и  $\tau_2$  можно записать как

$$\begin{aligned} \tau_1 &= \frac{1}{\omega n_{ph}} \\ \tau_2 &= \frac{1}{\omega (1 + n_{ph})} \end{aligned} \quad (6.18)$$

где  $w$  – квадрат матричного элемента туннельного прыжка с поглощением/испусканием фонона, а  $n_{ph}$  – число фононов, определяемое распределением Планка:

$$n_{ph} = \frac{1}{\exp(\varepsilon_{21} / k_B T) - 1} \quad (6.19)$$

где  $\varepsilon_{21}$  – разность энергий между состояниями (2) и (1) (здесь (1) – основное состояние, т.е. заряжен ближайший к донору акцептор). Из (2), (6.17), (6.18) и (6.19) получаем

$$\delta E_{\omega}^2 = (\bar{E}_1 - \bar{E}_2)^2 w^{-1} \frac{(1 - \exp(-\varepsilon_{21} / k_B T)) \exp(-\varepsilon_{21} / k_B T)}{(1 + \exp(-\varepsilon_{21} / k_B T))^3} \quad (6.20)$$

Чтобы получить отсюда выражение для скорости релаксации [12], надо домножить (6.17) на  $b_q^2$ , где

$$b_q = \frac{eQ\beta_Q}{4\hbar I(2I-1)} \quad (6.21)$$

- коэффициент, связывающий усреднённый по углам матричный элемент квадрупольного взаимодействия с электрическим полем [33]. Окончательно получаем

$$T_1^{-1} = \Delta E^2 w^{-1} \left( \frac{eQ\beta_Q}{4\hbar I(2I-1)} \right)^2 \frac{(1 - \exp(-\varepsilon_{21} / k_B T)) \exp(-\varepsilon_{21} / k_B T)}{(1 + \exp(-\varepsilon_{21} / k_B T))^3} \quad (6.22)$$

Формула (6.22) даёт возможность рассчитать температурную зависимость  $T_1$ . Для этого необходимо оценить  $\varepsilon_{21}$  и  $\Delta E^2 = \langle (\bar{E}_1 - \bar{E}_2)^2 \rangle$ . Они определяются кулоновскими энергиями и электрическими полями двух зарядов, расположенных на расстояниях  $r_{DA}^{(1)}$  и  $r_{DA}^{(2)}$  для ближайшего и следующего акцептора. В качестве оценки примем положения максимумов функций распределения первого и второго ближайших соседей:

$$\begin{aligned}
 F_{DA}^{(1)}(r) &= 4\pi r^2 n_A \exp\left(-\frac{4}{3}\pi r^3 n_A\right) \\
 F_{DA}^{(2)}(r) &= \frac{16}{3}\pi^2 r^5 n_A^2 \exp\left(-\frac{4}{3}\pi r^3 n_A\right)
 \end{aligned}
 \tag{6.23}$$

Максимумы этих функций приходятся на расстояния от донора

$$\begin{aligned}
 R_{DA}^{(1)} &= (2\pi n_A)^{-1/3} \\
 R_{DA}^{(2)} &= \left(\frac{4\pi}{5} n_A\right)^{-1/3}
 \end{aligned}
 \tag{6.24}$$

В результате мы получаем

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_{12} &= -\frac{e^2}{\varepsilon} \left( \frac{1}{R_{DA}^{(1)}} - \frac{1}{R_{DA}^{(2)}} \right) \\
 \Delta E^2 &= \frac{e^2}{\varepsilon^2} \left( \left( \frac{1}{R_{DA}^{(1)}} \right)^4 - \left( \frac{1}{R_{DA}^{(2)}} \right)^4 \right)
 \end{aligned}
 \tag{6.25}$$

где квадрат электрического поля усреднён по угловому распределению двух акцепторов.

Подгонка экспериментальных зависимостей  $T_1$  показана на Рис.6.4 сплошными кривыми. Наилучшее согласие для температурных зависимостей получено при значении единственного подгоночного параметра,  $\tau_{ph} = w^{-1}$  (характерного времени прыжка с участием фонона) в  $3 \mu s$  для образца G и  $5 \mu s$  для образца H. Поскольку в исследованном диапазоне магнитных полей было выполнено условие  $\gamma_N B \tau_c \ll 1$ , зависимость  $T_1$  от магнитного поля отсутствует, в согласии с результатами эксперимента.

На Рис. 6.8 схематически показаны различия квадрупольной релаксации в полупроводниках p- и n-типа. В кристаллах и структурах n-типа ядерные спины динамически поляризуются электронами на нейтральных донорах, и ядерная поляризация распространяется спиновой диффузией в объём кристалла. В темноте спиновая система удалённых от доноров ядер отогревается под действием крупномасштабных флуктуаций электрического поля, характеризующиеся длинными временами корреляции. В кристаллах p-типа ядерные спины динамически поляризуются фотовозбуждёнными электронами, захваченными на заряженные доноры, а спиновая диффузия в объём кристалла

блокирована квадрупольной релаксацией из-за перезарядки донора в процессе накачки. В темноте ядерная поляризация вблизи заряженного донора релаксирует под действием быстро флуктуирующего электрического поля, возникающего при прыжках заряда между ближайшими к донору акцепторами.

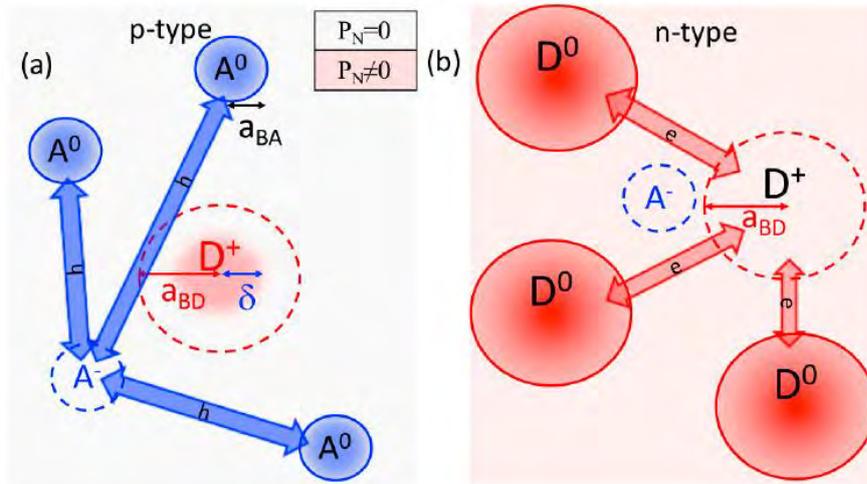


Рисунок 6.8. Схема квадрупольной релаксации в GaAs p-типа (a) и n-типа (b).

### 6.3. Механизмы спин-решёточной релаксации ядер в металлическом n-GaAs.

Основным механизмом ядерной спин-решёточной релаксации в металлах является механизм Корринги – рассеяние электронов, находящихся на поверхности Ферми, на ядерных спинах [78, 12]. В вырожденных (металлических) полупроводниках плотность электронных состояний на уровне Ферми на порядки меньше, что соответственно уменьшает скорость релаксации.

В исследованных нами образцах А, В и F концентрация электронов была не намного выше, или порядка, пороговой концентрации перехода диэлектрик-металл  $((1 \div 2) \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3})$ . Тем не менее, скорость спиновой релаксации в магнитных полях 100-1250 Гс демонстрирует линейную температурная зависимость в диапазоне температур 5-30К (Рис.6.3). В наиболее легированном образце F ( $n_D = 9 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ,  $E_F \approx 10 \text{ meV}$ ) при температурах от 10 до 30 К экспериментально измеренные значения  $T_1^{-1}$  без подгоночных параметров ложатся на теоретическую зависимость Корринги:

$$T_1^{-1}(T) = \frac{\pi}{\hbar} \langle A^2 \rangle v_0^2 \rho_F^2 k_B T \quad (6.26)$$

где  $\langle A^2 \rangle$  - усреднённый по изотопам квадрат константы сверхтонкого взаимодействия,  $v_0$  - объём примитивной ячейки,  $\rho_F = \frac{1}{\pi^2 \hbar^2} (3\pi^2 n_D)^{1/3}$  - плотность состояний на поверхности Ферми. Наклон температурной зависимости  $T_1^{-1}$  в образце А ( $n_D = 4 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ ) также соответствует формуле (6.26), но здесь имеется постоянная составляющая (подставка), не описываемая законом Корринги и соответствующая дополнительному каналу релаксации с  $T_1 \approx 400 \text{ с}$ . Заметим, что  $T_1^{-1}(T)$  в образце F также останавливается на примерно таком же постоянном уровне при температурах меньше 10К. Подобные времена характерны для ограниченной диффузией сверхтонкой релаксации в диэлектрическом n-GaAs (см. выше). Можно предположить, что в металлических образцах они имеют ту же природу. Действительно, на образце В ( $n_D = 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ ) наблюдалась релаксация ядерных спинов на электронах, локализованных на близких парах заряженных доноров, с характерным временем 10 секунд (см. главу 4). Такие пары, способные связать электрон, несмотря на экранирование электронным газом, могут играть роль центров-убийц, к которым идёт спиновая диффузия. Характерный размер пары определяется радиусом экранирования вырожденным электронным газом:

$$r_D = \frac{1}{2} \left( \frac{\pi a_B^3}{3 n_D} \right)^{1/6} \quad (6.27)$$

Концентрация пар может быть оценена как произведение концентрации доноров на вероятность попадания второго донора в пределах  $r_D$  от первого:

$$n_p \approx \frac{4}{3} \pi n_D^2 r_D^3 \exp\left(-\frac{4}{3} \pi n_D r_D^3\right) \quad (6.28)$$

Скорость релаксации за счёт спиновой диффузии к парам теперь может быть оценена по формуле Хуцишвили-Де Жена:

$$T_{Dp}^{-1} \approx 4\pi D_N n_p r_D \quad (6.29)$$

Для образца F ( $n_D = 9 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) это даёт  $r_D = 7.5 \text{ nm}$ ,  $n_p \approx 1.2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  и  $T_{Dp} \approx 100 \text{ c}$ , а для образца A ( $n_D = 4 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ )  $r_D = 8.6 \text{ nm}$ ,  $n_p \approx 3.8 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  и  $T_{Dp} \approx 250 \text{ c}$ . Как видно, оценки в модели релаксации на парах доноров дают близкую по порядку величины, но несколько большую, чем полученная в эксперименте, скорость релаксации. Кроме того, в сильнолегированном образце F вклад локализованных состояний не наблюдается при температурах выше 10К, что может быть следствием делокализации электронов при повышении температуры в условиях сильного экранирования электронным газом.

В целом полученная в эксперименте картина спин-решёточной релаксации ядер в образцах с вырожденным электронным газом позволяет говорить о переходном режиме от ограниченной диффузией сверхтонкой релаксации на локализованных электронных состояниях к механизму Корринги, наблюдающемуся при уровнях легирования, лежащих ненамного выше перехода диэлектрик-металл.

Зависимость  $T_1$  от магнитного поля в таких структурах качественно напоминает наблюдающуюся в диэлектрическом n-GaAs, но менее выражена – подъём скорости релаксации в слабых полях не такой сильный, примерно в 3 раза вместо одного-двух порядков в диэлектрических структурах. Её причины не вполне ясны. Экранирование электронным газом делает маловероятным отогрев флуктуациями электрического поля. Механизм Корринги при диполь-дипольном взаимодействии между ядерными спинами должен приводить к росту скорости релаксации в  $\xi \approx 3$  раз при понижении магнитного поля ниже локального за счёт корреляции электронного поля на разных ядрах [12]. Однако локальное поле в исследованных гетероструктурах в несколько раз больше, чем должно быть при диполь-дипольном взаимодействии, что связано, скорее всего, с квадрупольным расщеплением ядерных уровней, наведённым деформацией (см. главу 5). Для квадрупольного взаимодействия  $\xi \approx 1$  [79] и существенного возрастания скорости релаксации в слабых полях наблюдаться не должно.

**Основные результаты Главы 6:**

1. Основными механизмами спин-решёточной релаксации ядер в диэлектрической фазе n-GaAs при температурах ниже 20К являются сверхтонкая релаксация спинов ядер, контактирующих с локализованными на донорах электронами, спиновая диффузия к донорным центрам и квадрупольная релаксация. Квадрупольная релаксация индуцируется переменными электрическими полями, возникающими в результате пространственно-временных флуктуаций заряда в примесной зоне. Этот механизм определяет скорость релаксации (отогрева) удалённых от доноров ядерных спинов в магнитных полях меньше локального, и подавляется более сильными магнитными полями.
2. В металлической фазе n-GaAs, при концентрациях доноров ненамного выше перехода диэлектрик-металл, спин-решёточная релаксация определяется механизмом Корринги (рассеянием свободных электронов с поверхности Ферми на флуктуациях ядерной намагниченности), а также сверхтонким взаимодействием с электронами, локализованными на близких парах ионизованных доноров.
3. В диэлектрическом GaAs p-типа время спин-решёточной релаксации оптически ориентированных ядерных спинов на три порядка короче, чем в n-GaAs, и составляет десятки или сотни миллисекунд. Это обусловлено тем, что динамическая поляризация ядерных спинов осуществляется фотовозбуждёнными электронами, захваченными на заряженные донорные центры. Отогрев ядерных спинов в окрестности немногочисленных доноров происходит через квадрупольное взаимодействие под действием флуктуирующих электрических полей, вызванных перезарядкой донора в процессе накачки и прыжкам заряда по ближайшим к донору акцепторам после выключения накачки.

*Исследования, составившие содержание данной главы, опубликованы в работах [59-61, 67, 72, 73, 75, 77].*

## Заключение

В результате исследований, составивших основу диссертации, складывается следующая общая картина релаксации неравновесного углового момента и энергии во взаимодействующих спиновых системах резидентных электронов и ядер решётки в прямозонных полупроводниках.

Релаксация углового момента электронов происходит за счёт его передачи в ядерную спиновую систему через сверхтонкое взаимодействие и в кристаллическую решётку за счёт спин-орбитального взаимодействия. В случае локализованных на донорах электронов соотношение эффективности этих двух фундаментальных каналов релаксации регулируется временем корреляции электронного спина на доноре, которое при низких температурах определяется, в основном, обменным взаимодействием между локализованными электронами и сокращается с ростом концентрации доноров. Спин-орбитальная релаксация в диэлектрической фазе идёт за счёт анизотропной части обменного взаимодействия, возникающей в полупроводниках без центра инверсии в результате вращения спина спин-орбитальным полем при туннелировании. В сильнолегированных кристаллах с вырожденным электронным газом (металлическая фаза) релаксация как углового момента, так и энергии определяется механизмом Дьяконова-Переля с рассеянием на заряженных донорах.

Ни сверхтонкое, ни анизотропное обменное взаимодействие не обеспечивают передачи энергии электронной спиновой системы в решётку. Поэтому в спиновом ансамбле локализованных электронов может устанавливаться спиновая температура, отличная от температуры решётки. Выравнивание спиновой температуры электронной спиновой системы с температурой решётки происходит за счёт индуцированных фононами прыжков электронов с нейтральных на заряженные доноры в пределах небольшого числа пар близко расположенных донорных центров.

В ядерной спиновой системе спиновая температура устанавливается практически всегда, в том числе в микроструктурах с остаточной деформацией решётки, где спиновая теплоёмкость ядер многократно возрастает из-за квадрупольного взаимодействия.

В диэлектрической фазе полупроводников n-типа отогрев (энергетическая релаксация) ядерной спиновой системы в слабых магнитных полях происходит через квадрупольное взаимодействие с переменными электрическими полями, создаваемыми флуктуациями заряда в примесной зоне. В магнитных полях, превышающих локальное поле спин-спиновых взаимодействий ядер, квадрупольный отогрев подавляется, и основным механизмом релаксации становится сверхтонкое взаимодействие с локализованными электронами, ограниченное спиновой диффузией к примесным центрам. Этот механизм обеспечивает одновременно релаксацию энергии и углового момента. То же самое справедливо и для механизма Корринги, определяющего спин-решёточную релаксацию ядер в металлической фазе.

В полупроводниках p-типа динамическая поляризация ядерных спинов при оптической накачке осуществляется захваченными на заряженные доноры фотовозбуждёнными электронами и ограничивается областью внутри Боровского радиуса донора, так как флуктуирующие из-за перезарядки донора электрические поля отогревают ядерные спины вокруг донора. После выключения накачки поляризация ядерных спинов релаксирует под действием флуктуирующих полей, созданных прыжками заряда между ближайшими к донору акцепторами.

Все эти особенности электронной и ядерной спиновой релаксации были экспериментально продемонстрированы на арсениде галлия как модельном полупроводнике. Развитая теория, в основном, применима ко всем кубическим полупроводникам  $A^{III}B^V$  и  $A^{III}B^V$ , а также, с очевидными модификациями, к полупроводникам со структурой вюртцита. Важным исключением являются

кристаллы, в которых все ядра имеют спин  $\frac{1}{2}$  (например, CdTe). В таких материалах квадрупольные механизмы ядерной релаксации отсутствуют. Систематическое экспериментальное исследование спин-решёточной релаксации в таких полупроводниках, а также в различных квантоворазмерных структурах, составило бы естественное и очень полезное продолжение данной работы.

### **Благодарности.**

Я признателен всем коллегам из Физико-Технического института им. Иоффе (Р.И.Джигоеву, В.К.Калевичу, В.Л.Кореневу, А.В.Кудинову, Ю.Г.Кусраеву, М.В.Лазареву, Б.Р.Намозову, М.М.Глазову, Д.С.Смирнову), лаборатории Оптики спина СПбГУ (С.Ю.Вербину, И.Я.Герловину, В.С.Запасскому, И.В.Игнатьеву, Г.Г.Козлову, М.С.Кузнецовой, В.М.Литвяк, М.Ю.Петрову, И.И.Рыжову, Р.В.Чербунину, А.В.Кавокину), Университета Монпелье (М.Р.Владимировой, Д.Скальберу, С.Кроненбержеру) и Технического университета Дортмунда (В.В.Белых, М.Котуру, П.С.Соколову, Д.Р.Яковлеву, М.Байеру, Р.Моцеку, В.Зутеру), за удовольствие от совместной работы над экспериментальными и теоретическими задачами по физике спиновых систем электронов и ядер, часть из которых представлена в этой диссертации.

Я благодарен профессору И.В.Игнатьеву и моей жене Ю.Г.Бояриновой, без понуканий и поддержки которых результаты этой работы никогда не превратились бы в диссертацию.

Я хотел бы особо поблагодарить Машу Владимирову, приводившую мои мысли в порядок на протяжении многих лет сотрудничества и оказавшую неоценимую помощь при подготовке рукописи диссертации.

## Список литературы

1. Optical Orientation, Modern Problems in Condensed Matter Science Series, Vol. 8/ edited by F. Meier and B. Zakharchenya — North-Holland, Amsterdam, 1984 (Ch.2 by M.I.Dyakonov and V.I.Perel)
2. *Gr'ncharova E.I., Perel V.I.*, Relaxation of nuclear spins interacting with holes in semiconductors// Fiz. Tekhn. Poluprovodnikov — 1977 — Vol.11 — P.1697 [Sov. Phys. Semicond. 11, 997 (1977)]
3. *Fischer J., Coish W. A., Bulaev D. V., and Loss D.*, Spin decoherence of a heavy hole coupled to nuclear spins in a quantum dot// Phys. Rev. B — 2008 — Vol.78 — P.155329.
4. *Shchepetilnikov A. V., Frolov D. D., Nefyodov Yu. A., Kukushkin I.V., Smirnov D. S., Tiemann L., Reichl C., Dietsche W., and Wegscheider W.*, Nuclear magnetic resonance and nuclear spin relaxation in AlAs quantum well probed by ESR, Supplemental materials// Phys. Rev. B — 2016 — Vol.94 — P.241302.
5. Spin Physics in Semiconductors (2nd edition) / ed. by M. I. Dyakonov — Berlin : Springer-Verlag, 2017. Ch.1
6. *Dresselhaus G.* Spin-Orbit Coupling Effects in Zinc Blende Structures// Phys. Rev. — 1955 — Vol.100 — P.580.
7. *Optical Orientation*, Modern Problems in Condensed Matter Science Series, Vol. 8, edited by F. Meier and B. Zakharchenya (North-Holland, Amsterdam, 1984), Ch.3 by A.N.Titkov and G.E.Pikus
8. *Ohkawa F.J., Uemura Y.J.* Quantized surface states of a narrow-gap semiconductor// J. Phys. Soc. Jpn. — 1974 — Vol.37 — P.1325.
9. *Vasko F.T.* Spin splitting in the spectrum of two-dimensional electrons due to surface potential// Sov. Phys. JETP Lett. — 1979 — Vol.30 — P.541.

10. *Dyakonov M.I., Kachorovskii V.Yu.* Spin Relaxation of Two Dimensional Electrons in Noncentrosymmetric Semiconductors// Fiz.Tech.Poluprov. — 1986 — Vol.20 — P.178 [Sov. Phys. Semicond. 20, 110 (1986)]
11. *Kavokin K.V., Portnoi M.E.* Spin-orbit terms in multi-subband electron systems: a bridge between bulk and two-dimensional Hamiltonians// Semiconductors — 2008 — Vol.42 — P.989
12. The Principles of Nuclear Magnetism/ A. Abragam — Oxford, University Press, 1961.
13. Optical Orientation, Modern Problems in Condensed Matter Science Series, Vol. 8/ edited by F. Meier and B. Zakharchenya — North-Holland, Amsterdam, 1984 (Ch.3 by Merkulov and Fleisher)
14. *Brun E., Mahler R. J., Mahon H., and Pierce W. L.* Electrically induced nuclear quadrupole spin transitions in a GaAs single crystal// Phys. Rev. — 1963 — Vol.129 — P/1965.
15. Quantum Mechanics/ Landau L D and Lifshitz E M — Oxford: Pergamon 1977.
16. *Herring C.*, Critique of the Heitler-London method of calculating spin couplings at large distances // Review of Modern Physics — 1962. — Vol.34. — P.631.
17. *Gor'kov L P and Pitaevskii L P.*, Energy of terms splitting in the hydrogen molecule// Dokl. Akad. Nauk SSSR — 1963 — Vol.151 — P.822 [Sov. Phys.-Dokl. 1964 Vol.8 P.788]
18. *Gor'kov L P and Pitaevskii L P.*, Corrections to the paper “Energy of terms splitting in the hydrogen molecule” Dokl. Akad. Nauk SSSR — 1964 — Vol.158 — P.1246
19. *Herring C., Flicker M.*, Asymptotic exchange coupling of two hydrogen atoms// Physical Review— 1964. — Vol.34. — P.A362.
20. *Massey H. S. W.*, Theory of the Scattering of Slow Electrons// Rev. Mod. Phys. — 1956 — Vol. 28 — P.199.

21. *Kavokin K. V.* Spin relaxation of localized electrons in n-type semiconductors// *Semic. Sci. Technol.* — 2008. — Vol. 23. — 114009.
22. *Optical Orientation* / ed. by F. Meier, B. P. Zakharchenya. — Amsterdam: North-Holland, 1984.
23. *Spin Physics in Semiconductors (2nd edition)* / ed. by M. I. Dyakonov — Berlin : Springer-Verlag, 2017.
24. *Paget D.*, Optical detection of NMR in high-purity GaAs under optical pumping: Efficient spin-exchange averaging between electronic states// *Phys. Rev. B.* — 1981. — Vol. 24. — P.3776.
25. *Spin Physics in Semiconductors (2nd edition)* / ed. by M. I. Dyakonov.— Berlin : Springer-Verlag, 2017. Ch.12 “Dynamic nuclear polarization and nuclear fields” by V.K.Kalevich, K.V.Kavokin, I.A.Merkulov and M.R.Vladimirova.
26. *Dyakonov M. I., Perel V. I.* Hyperfine interaction in optical orientation of electrons in semiconductors // *Z. Eksp. Teor. Fiz.* — 1973. — Vol. 65. —P. 362.
27. *Dyakonov M. I., Perel V. I.* Spin Orientation of Electrons Associated with the Interband Absorption of Light in Semiconductors // *Z. Eksp. Teor. Fiz.* — 1971. — Vol. 60. —P. 1954.
28. *Kalevich V. K. and Korenev V. L.* Optical polarization of nuclei and ODNMR in GaAs/AlGaAs quantum wells // *Appl. Magn. Reson.* — 1991 — Vol.2 — P.397.
29. *Merkulov I. A., Efros A. L., Rosen M.* Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots // *Phys. Rev. B* — 2002 — Vol.65 — P.205309. DOI: 10.1103/PhysRevB.65.205309.
30. *P.F.Braun, X.Marie, L.Lombeze, B.Urbaszek, T.Amand, P.Renucci, V.Kalevich, K.Kavokin, O.Krebs, P.Voisin, Y.Masumoto*, Direct observation of the electron spin relaxation induced by nuclei in quantum dots// *Phys.Rev. Letters* — 2005 — Vol.94 — P.116601.

31. *Dzhioev R. I. et al.* Manipulation of the Spin Memory of Electrons in n-GaAs // Phys. Rev. Lett. — 2002 — Vol.88 — P.256801.  
DOI:10.1103/PhysRevLett.88.256801.
32. *Paget D.* Optical detection of NMR in high-purity GaAs: Direct study of the relaxation of nuclei close to shallow donors// Phys. Rev. B — 1982 — Vol.25 — P.4444.
33. *Paget D., Amand T., and Korb J. P.* Light-induced nuclear quadrupolar relaxation in semiconductors// Phys. Rev. B — 2008 — Vol.77 — P.245201.
34. *Kavokin K.V.* Anisotropic exchange interaction of localized conduction-band electrons in semiconductors// Phys.Rev.B — 2001 — Vol.64 — P.075305.
35. *Dzyaloshinskii I.* A thermodynamic theory of “weak” ferromagnetism of antiferromagnetics// Phys. Chem. Solids — 1958 — Vol.4 — P.241.
36. *Moriya T.* Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism// Phys. Rev. — 1960 — Vol.120 — P.91.
37. *Electronic Properties of Doped Semiconductors/ Shklovskii B.I. and. Efros A.L* — Springer-Verlag, Berlin, 1984.
38. *Kavokin K.V.* Symmetry of anisotropic exchange interactions in semiconductor nanostructures// Phys. Rev. B — 2004 — Vol.69 — P.075302.
39. *Dzhioev R.I., Zakharchenya B.P., Korenev V.L., and Stepanova M.N.* Spin diffusion of optically oriented electrons and photon entrainment in n-gallium arsenide// Fiz. Tverd. Tela — 1997 — Vol.39 — P.1975 [Phys. Solid State 39, 1765]
40. *Kikkawa J.M. and Awschalom D.D.* Resonant Spin Amplification in n-Type GaAs// Phys. Rev. Lett. — 1998 — Vol.80 — P.4313.
41. *Kavokin K.V.* Optical manifestations of electron spin transport and relaxation in semiconductors// physica status solidi (a) — 2002 — Vol.191 — P.221.

42. *Dzhioev R.I., Kavokin K.V., Korenev V.L., Lazarev M.V., Meltser B.Ya., Stepanova M.N., Zakharchenya B.P., Gammon D., Katzer D.S.* Low-temperature spin relaxation in n-type GaAs// *Phys.Rev.B* — 2002 — Vol.66 — P.245204.
43. *Belykh V. V., Kuntsevich A. Yu., Glazov M. M., Kavokin K. V., Yakovlev D. R., and Bayer M.* Quantum Interference Controls the Electron Spin Dynamics in n-GaAs// *Phys. Rev. X* — 2018 — Vol.8 — 031021.
44. *Belykh V.V., Kavokin K.V., Yakovlev D.R., Bayer M.* Electron charge and spin delocalization revealed in the optically probed longitudinal and transverse spin dynamics in n-GaAs// *Physical Review B* — 2017 — Vol.96 — P.241201.
45. *Lonnemann J. G., Rugeramigabo E. P., Oestreich M., and Hübner J.* Closing the gap between spatial and spin dynamics of electrons at the metal-to-insulator transition// *Phys. Rev. B* — 2017— Vol.96 — P.045201.
46. *Quantum Processes in Semiconductors/ Ridley B.K* — Clarendon Press, Oxford, 1982.
47. *Dzhioev R.I., Kavokin K.V., Korenev V.L., Lazarev M.V., Poletaev N.K., Zakharchenya B.P., Stinaff E.A., Gammon D., Bracker A.S., Ware M.E.* Suppression of Dyakonov-Perel spin relaxation in high-mobility n-GaAs// *Phys. Rev. Lett.* — 2004 — Vol.93 — P.216402.
48. *Jusserand B., Richard D., Allan G., Priester C., and Etienne B.* Spin orientation at semiconductor heterointerfaces// *Phys. Rev. B* — 1995 — Vol.51 — P.4707(R); *Richards D. and Jusserand B.* Spin energetics in a GaAs quantum well: Asymmetric spin-flip Raman scattering// *ibid.* — 1999 — Vol.59 — P.R2506.
49. *Khutsishvili G.* Nuclear magnetic relaxation in ionic crystals// *Sov. Phys. JETP* — 1957 — Vol.4. — P.382 [*Zh.Exp.Teor.Fiz.* Vol.31, P.424, 1956].
50. *De Gennes P. G.* Sur la relaxation nucleaire dans les cristaux ioniques// *J. Phys. Chem. Solids* — 1958 — Vol.7 — P.345.

51. *Artemova E.S. and Merkulov I.A.* Nuclear field and Faraday effect in semiconductors// *Sov. Phys. Solid State* — 1985 — Vol.27 — P.941 [Fiz.Tv.Tela Vol.27 P.1558, 1985].
52. *Giri R., Cronenberger S., Vladimirova M., Scalbert D., Kavokin K.V., Glazov M.M., Nawrocki M., Lemaître A., and Bloch J.* Giant photoinduced Faraday rotation due to the spin-polarized electron gas in an n-GaAs microcavity// *Phys.Rev.B* — 2012 — Vol.85. — P.195313.
53. *Giri R., Cronenberger S., Glazov M. M., Kavokin K. V., Lemaître A., Bloch J., Vladimirova M., Scalbert D.* Nondestructive Measurement of Nuclear Magnetization by Off-Resonant Faraday Rotation” // *Physical Review Letters*, 2013. — Vol. 111, — № 8. — P. 087603
54. *Aleksandrov E. B. and Zapasskii V. S.* Magnetic resonance in the Faraday-rotation noise spectrum.// *JETP* — 1981 — Vol.54 — P.64.
55. *Zapasskii, V. S.* Spin-noise spectroscopy: from proof of principle to applications.// *Advances in Optics and Photonics* — 2013 — Vol.5 — P.131. doi: 10.1364/AOP.5.000131.
56. *Ryzhov I. I., Poltavtsev S.V., Kavokin K.V., Glazov M.M., Kozlov G.G., Vladimirova M., Scalbert D., Cronenberger S., Kavokin A.V., Lemaître A., Bloch J., Zapasski V.S.*, Measurements of nuclear spin dynamics by spin-noise spectroscopy.// *Applied Physics Letters* — 2015 — V.106 — P.242405. doi: 10.1063/1.4922771.
57. *Ryzhov I. I., Kozlov G. G., Smirnov D. S., Glazov M. M., Efimov Yu. P., Eliseev S. A., Lovtcius V. A., Petrov V. V., Kavokin K. V., Kavokin A. V., and Zapasski V. S.*, Spin noise explores local magnetic fields in a semiconductor// *Sci. Rep.* — 2016 — V.6 — P.21062.
58. *Kalevich V.K., Kulkov V.D., and Fleisher V.G.*, Optical cooling of the nuclear spin system of a semiconductor, combined with adiabatic demagnetization// *Izvestiya Akademii Nauk SSSR Seriya Fizicheskaya* — 1982 — V.46 — P.492 [Bull. Acad. Sci. USSR, Phys. Ser. 46, 70 (1982)].

59. *Kotur, M.; Dzhioev, R. I.; Kavokin, K. V.; et al.* Nuclear Spin Relaxation Mediated by Fermi-Edge Electrons in n-Type GaAs// JETP LETTERS — 2014 — Vol.99, P.37.
60. *Kotur M., Dzhioev R. I., Vladimirova M., Jouault B., Korenev V. L., and Kavokin K. V.*, Nuclear spin warm up in bulk n-GaAs// Phys. Rev. B — 2016 — Vol.94 — P.081201(R).
61. *Vladimirova M, Cronenberger S, Scalbert D, Kotur M, Dzhioev RI, Ryzhov II, Kozlov GG, Zapasskii VS, Lemaître A, Kavokin KV*, Nuclear spin relaxation in n-GaAs: From insulating to metallic regime// Physical Review B — 2017 — Vol.95 — P.125312.
62. *Purcell E.M., Pound R.V.* A Nuclear Spin System at Negative Temperature// Phys. Rev. — 1951 — Vol.81 — P.279.
63. *Abragam A. and Proctor W. G.*, Spin temperature// Phys. Rev. — 1958 — Vol.109 — P.1441.
64. *Chekhovich E. A., Ulhaq A., Zallo E., Ding F., Schmidt O. G., and Skolnick M. S.*, Measurement of the spin temperature of optically cooled nuclei and GaAs hyperfine constants in GaAs/AlGaAs quantum dots// Nat. Mater. — 2017 — Vol.16 — P.4959.
65. Spin Temperature and Nuclear Magnetic Resonance in Solids/ Goldman M. — International Series of Monographs on Physics (Clarendon, Oxford, UK, 1970).
66. Statistical physics/ *Landau L D and Lifshitz E M* — Butterworth-Heinemann 1980; 3 edition, Chapter 12.
67. *Vladimirova M, Cronenberger S, Scalbert D, Ryzhov II, Zapasskii VS, Kozlov GG, Lemaître A, Kavokin KV*, Spin temperature concept verified by optical magnetometry of nuclear spins// Physical Review B — 2018 — Vol.97 — P.041301.
68. *Paget D., Lampel G., Sapoval B., and Safarov V.*, Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions// Phys. Rev. B — 1977 — Vol.15 — P.5780.

69. *Flisinski K., Gerlovin I. Y., Ignatiev I. V., Petrov M. Y., Verbin S. Y., Yakovlev D. R., Reuter D., Wieck A. D., and Bayer M.*, Optically detected magnetic resonance at the quadrupole-split nuclear states in (In,Ga)As/GaAs quantum dots// *Phys. Rev. B* — 2010 — Vol.82 — P.081308.
70. *Eickhoff M., Lenzmann B., Suter D., Hayes S. E., and Wieck A. D.*, Mapping of strain and electric fields in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As quantum-well samples by laser-assisted NMR// *Phys. Rev. B* — 2003 — Vol.67 — P.085308.
71. *Oja A. S. and Lounasmaa O. V.*, Nuclear magnetic ordering in simple metals at positive and negative nanokelvin temperatures// *Rev. Mod. Phys.* — 1997 — Vol.69 — P.1.
72. *Mocek R.W., Korenev V.L., Bayer M., Kotur M., Dzhioev R.I., Tolmachev D.O., Cascio G., Kavokin K.V., Suter D.* High-efficiency optical pumping of nuclear polarization in a GaAs quantum well// *Physical Review B* — 2017 — Vol.96 — P.201303.
73. *Kotur M., Dzhioev R. I., Vladimirova M., Cherbunin R. V., Sokolov P. S., Yakovlev D. R., Bayer M., Suter D., Kavokin K. V.* Spin-lattice relaxation of optically polarized nuclei in p-type GaAs// *Physical Review B* — 2018 — Vol.97 — P.165206.
74. *Kalevich V. K., Kul'kov V. D., and Fleisher V. G.*, Onset of a nuclear polarization front under optical spin orientation in a semiconductor// *JETP Lett.* — 1983 — Vol.35 — P.20.
75. *Sokolov P. S., Petrov M. Yu., Kavokin K. V., Kuznetsova M. S., Verbin S. Yu., Gerlovin I. Ya., Yakovlev D. R., and Bayer M.*, Subsecond nuclear spin dynamics in n-GaAs// *Phys. Rev. B* — 2019 — Vol.99 — P.075307.
76. *Burin A. L., Shklovskii B. I., Kozub V. I., Galperin Y. M., and Vinokur V.*, Many electron theory of 1/f noise in hopping conductivity// *Phys. Rev. B* — 2006 — Vol.74 — P.075205.
77. *Kavokin, K. V., Koudinov, A. V.* Dynamical polarization of nuclear spins by acceptor-bound holes in a zinc-blende semiconductor// *Phys. Rev. B* — 2013 — Vol.88 — P.235202.

78. *Korringa J.*, Nuclear magnetic relaxation and resonance line shift in metals//  
Physica (Amsterdam) — 1950 — V.16 — P.601.
79. *Wolf D.*, Spin Temperature and Nuclear Spin Relaxation in Matter: Basic  
Principles and Applications (Oxford University Press, Oxford, 1979).

## Список таблиц

<b>Таблица 1.1.</b> Гиромагнитные отношения для спинов электронов и ядер в GaAs.....	14
<b>Таблица 6.1.</b> Параметры образцов. Тип структуры: MC – микрорезонатор, bulk – объёмный эпитаксиальный слой, DHS – двойная гетероструктура, QW – квантовая яма. d – толщина слоя. n– концентрация резидентных электронов. p - концентрация резидентных дырок. Метод исследования: SN - спиновый шум, FR – Фарадеевское вращение, PL – фотолюминесценция с тёмными интервалами.....	85

## Список рисунков

<b>Рисунок 3.1</b> Кривая Ханле и зависимость её полуширины от интенсивности накачки в объёмном образце арсенида галлия с концентрацией доноров $n_D = 7 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ .....	35
---	----

**Рисунок 3.2** Зависимость времен спиновой релаксации и корреляции от концентрации доноров в n-GaAs при низких температурах (2-6.5K). Символы: экспериментальные данные, полученные автором (незаполненные кружки ( $\tau_s$ ) и треугольники ( $\tau_c$ )) и взятые из литературы. Линии: серый пунктир – аппроксимация измеренной зависимости времени корреляции  $\tau_c$  от концентрации доноров; серая штриховая – теоретическая зависимость  $\tau_c$  в модели обменной спиновой диффузии; оранжевая сплошная -  $\tau_s$ , рассчитанная по измеренным временам корреляции с учётом релаксации на ядрах и анизотропного обмена; оранжевая пунктирная – вклад сверхтонкого взаимодействия ( $\tau_{SN}$ ); зелёная сплошная – теоретическая зависимость, учитывающая сверхтонкую и спин-орбитальную релаксацию при обменной спиновой диффузии; зелёная пунктирная – вклад анизотропного обмена ( $\tau_{SA}$ ). Тёмно-синяя сплошная линия показывает теоретическую зависимость времени релаксации по механизму Дьяконова-Переля при рассеянии на заряженных примесях, при этом префактор времени релаксации 3-й угловой

гармоники распределения по импульсам ( $\tau_3$ ) взят из сопоставления с  $\tau_3$ , экспериментально измеренной в работе [43] для  $n_D = 3.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . Тёмно-синяя штриховая – то же с теоретически рассчитанным префактором. Сиреневая линия – механизм Дьяконова-Переля с учётом эффекта слабой локализации [43].....37

**Рисунок 3.3** Зависимости времён релаксации первой и третьей угловых гармоник импульсного распределения (а), их отношения (b) и длины свободного пробега (с) от концентрации доноров в вырожденном полупроводнике.....41

**Рисунок 3.4** Временная зависимость сигналов Фарадеевского/Керровского вращения, отражающего спиновую динамику резидентных электронов после возбуждения коротким циркулярно поляризованным импульсом света, для различных магнитных полей и концентраций доноров. Эксперименты В.В.Белых из работы [44].....51

**Рисунок 3.5** Зависимость времён продольной ( $T_1$ ) и поперечной ( $T_2$ ) электронов, а также их произведения, от магнитного поля в слаболегированном  $n$ -GaAs. Эксперименты В.В.Белых [44].....52

**Рисунок 4.1** Фарадеевское вращение, индуцированное полем Оверхаузера в  $n$ -GaAs. а) схема эксперимента (описание в тексте). б) угол Фарадеевского вращения как функция времени.....58

**Рисунок 4.2** Ядерный магнитный резонанс, детектируемый по Фарадеевскому вращению полем Оверхаузера. а) сигнал «медленной» компоненты Фарадеевского вращения как функция времени. Красная линия показывает частоту переменного магнитного поля. б) то же как функция частоты. с) схема воздействия переменным полем на «быструю» компоненту. d) амплитуда «быстрой» компоненты как функция частоты переменного поля, приложенного во время накачки.....59

- Рисунок 4.3** Сравнительные интенсивности оптических переходов между валентной зоной и зоной проводимости (слева) и между валентной зоной и локализованными электронными состояниями, занятыми одним электроном (справа).....62
- Рисунок 4.4** Фарадеевское вращение при изменении знака внешнего поля. Затухающий сигнал обусловлен полем Оверхаузера.....62
- Рисунок 4.5.** а) схема эксперимента по измерению поля Оверхаузера по спектрам электронного спинового шума. б) эволюция спектра спинового шума со временем: слева – поле Оверхаузера сонаправлено внешнему, справа – противонаправлено.  
 в) резонанс в спектре электронного спинового шума.....64
- Рисунок 4.6** Методика эксперимента по исследованию релаксационных процессов в ядерной спиновой системе методом люминесценции с тёмными интервалами: а) схема установки; б) временная диаграмма эксперимента; в) кривые Ханле в наклонном поле при накачке светом переменной и постоянной циркулярной поляризации. Штриховая стрелка показывает изменение поляризации люминесценции по мере релаксации ядерной намагниченности.....65
- Рисунок 5.1.** Изменение ядерной спиновой температуры  $\theta_N = (k_B\beta)^{-1}$  (штриховые линии) и намагниченности  $\langle M_B \rangle$  (сплошные линии) при адиабатическом сканировании магнитного поля от начальной величины  $B_i$  через ноль, в соответствии с формулами (5.10) и (5.11) в пренебрежении спин-решёточной релаксацией ( $T_1 = \infty$ ).....73
- Рисунок 5.2.** Схема эксперимента по адиабатическому перемагничиванию ядерной спиновой системы. Вверху: спектроскопия электронного спинового шума. Внизу: нерезонансное Фарадеевское вращение.....75

**Рисунок 5.3.** Слева: зависимость угла Фарадеевского вращения от магнитного поля при его многократном сканировании через ноль. Прямые линии – Фарадеевское вращение, наведённое непосредственно внешним полем. В середине: вклад ядерной намагниченности в Фарадеевское вращение на образце А при положительной (снизу) и отрицательной (сверху) спиновой температуре ядер. Справа: то же на образце В.....75

**Рисунок 5.4.** Эволюция спектров электронного спинового шума (частота отложена по вертикальной оси, спектральная плотность мощности шума показана цветом) при сканировании магнитного поля для образцов А (слева), В (в середине) и С (справа).  $\theta_{N0}$  - ядерная спиновая температура при  $B=0$ ....77

**Рисунок 5.5.** Изменение намагниченности при прохождении через поле смешивания (фиолетовая кривая) и в случае  $B_{mix} > B_0$  (синяя кривая).

Штриховая линия: зависимость  $M_{mix}$  от  $B_{mix}$  .....80

**Рисунок 5.6.** Кривая адиабатического перемагничивания, измеренная на образце А с предварительной выдержкой в темноте. Штриховая линия – подгонка по формуле (5.11).....81

**Рисунок 5.7.** Частоты переходов между ядерными спиновыми уровнями в арсениде галлия в зависимости от магнитного поля. (а, с, е) – в пределах одного ядра, (b, d, f) – между разными изотопами: (а, b) – в отсутствие деформации, (с, d) ось деформации вдоль магнитного поля, (е, f) – ось деформации поперёк магнитного поля. Цветные полосы внизу показывают диапазон разрешённых по энергии переходов ( $\Delta\nu \leq 5/T_2$ ).....82

**Рисунок 6.1.** Временные диаграммы экспериментов по исследованию ядерной спин-решёточной релаксации методами (а) фотолюминесценции с тёмными интервалами, (b) Фарадеевского вращения и (с) спинового шума. d) пример измеренной временной зависимости ядерного поля и спиновой температуры (на вставке). В случае (а) ядерное поле измеряется в поле  $B_{pump}$  в зависимости от длительности предшествующего тёмного интервала (когда поле равно  $B_{dark}$ ), в случаях (b) и (с) – непосредственно в поле  $B_{dark}$  .....86

- Рисунок 6.2.** Зависимость  $1/T_1$  от магнитного поля для структур со слоями GaAs n-типа при температуре 4-5К. а) объёмные слои; на вставке – более подробно для диапазона 0-20 Гс. б) микроструктуры (микрорезонаторы и двойная гетероструктура). с) полуширина зависимостей (подгонка лоренцианом на подставке) как функция концентрации доноров.....87
- Рисунок 6.3.** Зависимость скорости релаксации от температуры в полях 150-1000 Гс для образцов А, D, E, F. ....88
- Рисунок 6.4.**  $T_1$  как функция магнитного поля (а) и температуры (b) в GaAs р-типа (левая ось, миллисекунды) и n-типа (правая ось, секунды).....88
- Рисунок 6.5.** Зависимость скорости ядерной спин-решёточной релаксации от магнитного поля для образца I (нелегированная квантовая яма шириной 19.7 нм).....89
- Рисунок 6.6.** Начальная стадия спин-решёточной релаксации в диэлектрическом n-GaAs: релаксация ядерных спинов, контактирующих с локализованным на доноре электроном [75].....90
- Рисунок 6.7.** а) Переход от релаксации углового момента к релаксации энергии как основному компоненту спин-решёточной релаксации ядер при снижении магнитного поля до величин, сопоставимых с локальными полями спин-спиновых взаимодействий. б) Основные механизмы спин-решёточной релаксации в n-GaAs: ограниченная диффузией сверхтонкая релаксация при  $B^2 \gg B_L^2$  и квадрупольный отогрев в слабых магнитных полях.....95
- Рисунок 6.8.** Схема квадрупольной релаксации в GaAs р-типа (а) и n-типа (b).....101

SAINT PETERSBURG STATE UNIVERSITY

*Manuscript copy*

Kavokin Kirill

**RELAXATION OF ANGULAR MOMENTUM AND ENERGY IN SPIN  
SYSTEMS OF DOPED SEMICONDUCTORS**

subdiscipline 01.04.10 – semiconductor physics

Dissertation for the degree of Doctor of Physical and Mathematical  
Sciences

Translated from Russian

Saint Petersburg

2020

## Contents

	Page
Introduction .....	125
Chapter 1. Magnetic and exchange interactions in semiconductors. Optical orientation and mechanisms of spin relaxation of electrons and nuclei.....	133
1.1. Introduction.....	133
1.2. Zeeman interaction.....	134
1.3. Magnetodipole interaction.....	135
1.4. Hyperfine interaction.....	136
1.5. Spin-orbit interaction.....	136
1.6. Quadrupole interaction.....	138
1.7. Exchange interaction.....	139
1.8. Basic principles of optical spin orientation in semiconductors .....	141
1.9. Spin relaxation mechanisms of electrons in semiconductors.....	144
1.10. Spin relaxation mechanisms of nuclei in semiconductors .....	146
Chapter 2. Anisotropic exchange interaction of localized conduction-band electrons in non-centrosymmetric semiconductor crystals and structures .....	148
Chapter 3. Electron spin relaxation in n-type semiconductors at low temperatures .....	154
3.1. Experimental studies of electron spin relaxation at low temperature in n-type GaAs in weak magnetic fields.....	154
3.2. Theoretical description of electron spin relaxation at low temperatures in GaAs and similar n-type semiconductors.....	158
3.2.1. Relaxation in metallic phase (Dyakonov-Perel mechanism).....	158
3.2.2. Relaxation in dielectric phase .....	162
3.2.2.1. Spin relaxation of donor-bound electrons in the absence of external magnetic field .....	162

3.2.2.2. Spin relaxation of donor-bound electrons in longitudinal external magnetic field .....	168
Chapter 4. Non-perturbing optical methods for measuring the nuclear spin system magnetization .....	174
4.1. Off-resonant Faraday rotation in the Overhauser field .....	175
4.2. Electron spin noise spectroscopy.....	181
4.3. Photoluminescence with dark intervals.....	183
Chapter 5. Optical investigation of the nuclear spin thermodynamics of semiconductors in weak magnetic fields.....	186
Chapter 6. Spin-lattice relaxation of the nuclear spin system in weak magnetic fields .....	202
6.1. Experimental studies of the spin-lattice relaxation of nuclei in GaAs.....	202
6.2. Main mechanisms of nuclear spin-lattice relaxation in dielectric n-GaAs.....	207
6.2.1. Quadrupole warm-up of the nuclear spin system by fluctuating electric fields .....	209
6.2.2. Specifics of dynamic polarization and relaxation of nuclear spins in dielectric p-GaAs.....	213
6.3. Mechanisms of nuclear spin-lattice relaxation in metallic n-GaAs .....	218
Conclusions.....	222
List of references.....	225
List of tables.....	234
List of figures.....	234

## INTRODUCTION

The spin physics of semiconductor structures originates from the experiments of Georges Lampel, who discovered in 1968 the optical orientation of electrons and nuclei in silicon. Its further development is mainly associated with direct-gap semiconductor compounds III-V and II-VI. This is due to both significantly better conditions for the creation and control of spin polarization by optical methods in direct-gap materials, and to the development of the technology for creating high-quality heterostructures based on solid solutions of these compounds. This combination of experimental and technological capabilities made it possible to realize and study many bright spin effects in bulk semiconductors and low-dimensional structures — quantum wells, quantum dots, superlattices, etc. Since the 1990s, these studies have been stimulated by the hope of creating, on the basis of spin phenomena, a new generation of devices for storing, processing and transmitting information formulated by D. Awschalom in the form of the concept of spintronics as an alternative and a development path for semiconductor electronics. This led to an avalanche-like increase in the research activity and the number of publications on spin phenomena in semiconductors.

Paradoxically, some important, both fundamental knowledge and possible applications, aspects of the spin physics in semiconductors remained unexplored until the beginning of the 21st century. Among them, in particular, was the behavior of the spin systems of a semiconductor when they are “left to their own devices”, i.e. in the absence of optical or electrical excitation. The mechanisms and characteristic times of relaxation of the non-equilibrium angular momentum and energy, transferred into the spin system by preliminary optical pumping or electric injection, remained unknown for both resident (due to doping) electrons and lattice nuclei. The lack of understanding of these processes, even for materials that were otherwise well studied, such as bulk gallium arsenide, evidently hindered the further development of spin physics in nanostructures and did not make it possible

to assess the prospects for creating information processing devices using short-term spin memory.

This dissertation summarizes the author's work performed from 2000 to 2019, as a result of which these gaps in understanding the fundamental properties of spin systems of semiconductors were basically closed.

The *relevance* of the work is determined by the fact that it gives an answer to the question of fundamental restrictions on the lifetime of the nonequilibrium spin of electrons and nuclei in various semiconductor systems, which is important for the further development of spin physics of semiconductor structures and semiconductor spintronics.

The *scientific novelty* of this work is determined by the fact that in it for the first time:

- 1) The anisotropy of the exchange interaction of localized conduction electrons in semiconductor structures without an inversion center is theoretically predicted.
- 2) A mechanism is proposed for electron spin relaxation in the impurity band of an n-type semiconductor due to the anisotropy of the exchange interaction of localized electrons.
- 3) The dependence of the electron spin relaxation time in n-type GaAs on the concentration of donor impurity in a wide doping range has been experimentally and theoretically studied. It is shown that at low temperatures, relaxation is determined by three mechanisms: interaction with nuclear spin fluctuations, anisotropic exchange interaction, and the Dyakonov-Perel mechanism.

- 4) The Faraday rotation of the plane of polarization of light by the Overhauser field of optically cooled nuclei in a semiconductor microcavity was experimentally demonstrated. Methods of non-perturbing control of the magnetization of a nuclear spin system by non-resonant Faraday rotation and spin noise spectra of resident electrons were proposed.
- 5) In a direct experiment on adiabatic magnetization reversal in real time, it was demonstrated that the optically cooled nuclear spin system of a semiconductor strictly follows the predictions of the theory of spin temperature.
- 6) A mechanism is proposed of quadrupole warm-up of the nuclear spin system by fluctuating fields arising from carrier hopping in the impurity band.
- 7) Spin-lattice relaxation of pre-optically cooled nuclei in semiconductor structures based on gallium arsenide in weak magnetic fields in the absence of optical excitation (including warm-up of the nuclear spin system in zero field) was experimentally and theoretically studied.

***The following statements are put forward for defense:***

- 1) The exchange interaction of localized conduction electrons in semiconductors and semiconductor structures lacking the inversion symmetry is anisotropic. The interaction Hamiltonian has the form of a scalar product of spins rotated relative to each other by an angle that increases with the distance between the localization centers. In systems with spin-orbit terms linear in the wave vector, this angle is directly proportional to the distance.
- 2) There exists a mechanism of spin relaxation of localized electrons in non-centrosymmetric semiconductors, due to the anisotropy of their exchange interaction. This mechanism, along with relaxation by the spins of the lattice nuclei, determines the time of spin relaxation of

electrons in the impurity band at helium temperatures in the absence of magnetic fields.

- 3) There exists a range of impurity concentrations and temperatures, in which the energy relaxation of the spin system of electrons localized on donors is slower than the relaxation of their nonequilibrium spin; Under these conditions, longitudinal spin relaxation occurs due to electron hops within scarce clusters of charged donor and is limited by spin diffusion. Optical or current injection of a nonequilibrium spin in a longitudinal magnetic field can be accompanied by cooling of the electron spin system.
- 4) The Overhauser field of the spin-polarized lattice nuclei causes the Faraday rotation of the polarization plane of light with the wavelength corresponding to the transparency region of the semiconductor; Nuclear magnetization induced Faraday rotation in semiconductor microcavities allows non-perturbing monitoring of the state of the nuclear spin system.
- 5) The magnetization of a cooled nuclear spin system of a semiconductor in weak magnetic fields follows the predictions of the theory of spin temperature even in the presence of quadrupole interactions, an order of magnitude stronger than the dipole-dipole interaction of nuclear spins.
- 6) Spin-lattice relaxation of nuclei in GaAs-type semiconductors can occur by the mechanism of warm-up of the nuclear spin system by fluctuating electric fields arising from thermally activated carrier hopping.
- 7) Spin-lattice relaxation of nuclei in p-doped GaAs semiconductors after their optical pumping occurs three orders of magnitude faster than in n-type semiconductors, as a result of fluctuations in the charge state of donor-acceptor pairs.

**Presentation of the work:** The results of the dissertation were reported at seminars of the Ioffe Institute and Spin Optics Laboratory of St. Petersburg State University, as well as at the following conferences:

International Conference on Physics of Semiconductors (ICPS-26), Edinburgh, UK (2002);

Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN-12), Hangzhou, China (2012);

Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN-12), Hersonissos, Greece (2013);

International Conference on Physics of Semiconductors (ICPS-34), Montpellier, France (2018);

IV International Conference on Terahertz Emission, Metamaterials and Nanophotonics, Lecce, Italy (2019).

**Publication:** The content of this work is presented in 22 scientific articles in journals indexed by citation systems Web of Science and Scopus.

**List of author publications on the topic of the dissertation:**

1. *Kavokin K.V., Portnoi M.E.* Spin-orbit terms in multi-subband electron systems: a bridge between bulk and two-dimensional Hamiltonians// Semiconductors — 2008 — Vol.42 — P.989
2. *Kavokin K. V.* Spin relaxation of localized electrons in n-type semiconductors// Semic. Sci. Technol. — 2008. — Vol. 23. — 114009.
3. *V.K.Kalevich, K.V.Kavokin, I.A.Merkulov and M.R.Vladimirova* Ch.12 “Dynamic nuclear polarization and nuclear fields” in Spin Physics in Semiconductors (2nd edition) / ed. by M. I. Dyakonov — Berlin : Springer-Verlag, 2017.
4. *Kavokin K.V.* Anisotropic exchange interaction of localized conduction-band electrons in semiconductors// Phys.Rev.B — 2001 — Vol.64 — P.075305.
5. *Kavokin K.V.* Symmetry of anisotropic exchange interactions in semiconductor nanostructures// Phys. Rev. B — 2004 — Vol.69 — P.075302.

6. *Kavokin K.V.* Optical manifestations of electron spin transport and relaxation in semiconductors// *physica status solidi (a)* — 2002 — Vol.191 — P.221.
7. *Dzhioev R.I., Kavokin K.V., Korenev V.L., Lazarev M.V., Meltser B.Ya., Stepanova M.N., Zakharchenya B.P., Gammon D., Katzer D.S.* Low-temperature spin relaxation in n-type GaAs// *Phys.Rev.B* — 2002 — Vol.66 — P.245204.
8. *Belykh V. V., Kuntsevich A. Yu., Glazov M. M., Kavokin K. V., Yakovlev D. R., and Bayer M.* Quantum Interference Controls the Electron Spin Dynamics in n-GaAs// *Phys. Rev. X* — 2018 — Vol.8 — 031021.
9. *Belykh V.V., Kavokin K.V., Yakovlev D.R., Bayer M.* Electron charge and spin delocalization revealed in the optically probed longitudinal and transverse spin dynamics in n-GaAs// *Physical Review B* — 2017 — Vol.96 — P.241201.
10. *Dzhioev R.I., Kavokin K.V., Korenev V.L., Lazarev M.V., Poletaev N.K., Zakharchenya B.P., Stinaff E.A., Gammon D., Bracker A.S., Ware M.E.* Suppression of Dyakonov-Perel spin relaxation in high-mobility n-GaAs// *Phys. Rev. Lett.* — 2004 — Vol.93 — P.216402.
11. *Giri R., Cronenberger S., Vladimirova M., Scalbert D., Kavokin K.V., Glazov M.M., Nawrocki M., Lemaître A., and Bloch J.* Giant photoinduced Faraday rotation due to the spin-polarized electron gas in an n-GaAs microcavity// *Phys.Rev.B* — 2012 — Vol.85. — P.195313.
12. *Giri R., Cronenberger S., Glazov M. M., Kavokin K. V., Lemaître A., Bloch J., Vladimirova M., Scalbert D.* Nondestructive Measurement of Nuclear Magnetization by Off-Resonant Faraday Rotation” // *Physical Review Letters*, 2013. — Vol. 111, — № 8. — P. 087603
13. *Ryzhov I. I., Poltavtsev S.V., Kavokin K.V., Glazov M.M., Kozlov G.G., Vladimirova M., Scalbert D., Cronenberger S., Kavokin A.V., Lemaître A., Bloch J., Zapasski V.S.*, Measurements of nuclear spin dynamics by spin-noise spectroscopy.// *Applied Physics Letters* — 2015 — V.106 — P.242405. doi: 10.1063/1.4922771.
14. *Ryzhov I. I., Kozlov G. G., Smirnov D. S., Glazov M. M., Efimov Yu. P., Eliseev S. A., Lovtcius V. A., Petrov V. V., Kavokin K. V., Kavokin A. V., and Zapasski V. S.*, Spin noise explores local magnetic fields in a semiconductor// *Sci. Rep.* — 2016 — V.6 — P.21062.
15. *Kotur, M.; Dzhioev, R. I.; Kavokin, K. V.; et al.* Nuclear Spin Relaxation Mediated by Fermi-Edge Electrons in n-Type GaAs// *JETP LETTERS* — 2014 — Vol.99, P.37.
16. *Kotur M., Dzhioev R. I., Vladimirova M., Jouault B., Korenev V. L., and Kavokin K. V.*, Nuclear spin warm up in bulk n-GaAs// *Phys. Rev. B* — 2016 — Vol.94 — P.081201(R).
17. *Vladimirova M, Cronenberger S, Scalbert D, Kotur M, Dzhioev RI, Ryzhov II, Kozlov GG, Zapasskii VS, Lemaître A, Kavokin KV*, Nuclear spin

- relaxation in n-GaAs: From insulating to metallic regime// *Physical Review B* — 2017 — Vol.95 — P.125312.
18. *Vladimirova M, Cronenberger S, Scalbert D, Ryzhov II, Zapasskii VS, Kozlov GG, Lemaître A, Kavokin KV*, Spin temperature concept verified by optical magnetometry of nuclear spins// *Physical Review B* — 2018 — Vol.97 — P.041301.
  19. *Mocek R.W., Korenev V.L., Bayer M., Kotur M., Dzhioev R.I., Tolmachev D.O., Cascio G., Kavokin K.V., Suter D.* High-efficiency optical pumping of nuclear polarization in a GaAs quantum well// *Physical Review B* — 2017 — Vol.96 — P.201303.
  20. *Kotur M., Dzhioev R. I., Vladimirova M., Cherbunin R. V., Sokolov P. S., Yakovlev D. R., Bayer M., Suter D., Kavokin K. V.* Spin-lattice relaxation of optically polarized nuclei in p-type GaAs // *Physical Review B* — 2018 — Vol.97 — P.165206.
  21. *Sokolov P. S., Petrov M. Yu., Kavokin K. V., Kuznetsova M. S., Verbin S. Yu., Gerlovin I. Ya., Yakovlev D. R., and Bayer M.*, Subsecond nuclear spin dynamics in n-GaAs// *Phys. Rev. B* — 2019 — Vol.99 — P.075307.
  22. *Kavokin, K. V., Koudinov, A. V.* Dynamical polarization of nuclear spins by acceptor-bound holes in a zinc-blende semiconductor// *Phys. Rev. B* — 2013 — Vol.88 — P.235202.

***The structure of the dissertation:*** The dissertation consists of an introduction, 6 chapters and a conclusion. Chapter 1 is a review of magnetic and exchange interactions, optical orientation, and spin relaxation in semiconductors. In Chapter 2, the Hamiltonian of the anisotropic exchange interaction of localized conduction electrons in a semiconductor lacking an inversion symmetry is derived. Chapter 3 discusses spin relaxation in the impurity band of a non-centrosymmetric semiconductor, proposes and justifies the mechanism of spin relaxation due to anisotropic exchange interaction, and presents the results of an experimental study of electron spin relaxation in n-GaAs with different doping levels. Chapter 4 describes non-perturbing methods for measuring the magnetization of a nuclear spin system, based on laser polarimetry. Chapter 5 presents the results of a study of the thermodynamics of an optically cooled spin system of lattice nuclei in semiconductor microstructures. Chapter 6 examines the mechanisms of warming up the

optically cooled spin system of nuclei due to interaction with charge carriers in semiconductors with different levels and types of doping.

The dissertation is presented in 121 pages with 26 figures and 2 tables. The bibliography contains 79 items.

# **Chapter 1. Magnetic and exchange interactions in semiconductors.**

## **Optical orientation and spin relaxation mechanisms of electrons and nuclei**

### **1.1.Introduction**

Semiconductor crystals are formed from the same elementary particles as the rest of the world; therefore, the main types of interaction of spins and orbital moments with external fields and with each other, relevant for semiconductors, are well known from atomic physics. These are magnetic Zeeman and magnetodipole spin-spin interactions, spin-orbit interactions, hyperfine interaction of spins of electrons and nuclei, as well as a non-magnetic and the only fundamentally quantum interaction, the exchange interaction. In the presence of a quadrupole spin moment, its interaction with electric field gradients is possible.

This whole set of interactions is also demonstrated by localized spin moments in solids - the spins of lattice nuclei and the electronic spins of the inner shells of magnetic atoms, either components of the lattice or impurities (except the exchange interaction of nuclear spins, which is usually extremely weak due to insignificant overlap of the wave functions of the nuclei). The fact that interacting particles in a solid are not separated by vacuum, but by a medium composed of other atoms, leads to the appearance of indirect exchange interactions having a greater range than the direct exchange. Due to the spin-orbit interaction, the symmetry of the indirect exchange changes, reflecting the symmetry of the crystalline environment.

In metals and semiconductors, this set is supplemented by interactions between the spins of delocalized charge carriers, their interactions with localized spins, and indirect interactions of localized spin moments through itinerant charge carriers. In particular, the indirect Ruderman – Kittel – Kasuya – Yosida (RKKI) exchange interaction via electrons on the Fermi surface, which in some cases can cause magnetic ordering of localized spins, is well known.

The transport and optical properties of semiconductor crystals and quantum-dimensional structures based on them are determined by electronic states near the edges of the lowest energy conduction bands and the highest valence bands. The properties of

quasiparticles — electrons and holes — in such states are strongly modified by the periodic potential of the crystal. It is not surprising that the interactions of the magnetic moments of the band charge carriers with each other, with external fields, and with localized spin moments reflect the specificity of the structure and often differ greatly in symmetry from their counterparts in atomic physics.

The main spin and magnetic interactions in semiconductors are discussed in more detail in the next six paragraphs of this chapter. The last three sections are devoted to the basic principles of the optical orientation of spins in semiconductors and the basic mechanisms of spin relaxation of electrons and nuclei, known by the start of the research comprising this dissertation.

## 1.2. Zeeman interaction

The energy of the magnetic moment in an external magnetic field is

$$E_z = -\vec{\mu} \cdot \vec{B} \quad (1.1)$$

The operator of the magnetic moment of the electron equals  $\mu_B g_e \hat{S}$ , where  $\mu_B = 9.27 \cdot 10^{-20}$  erg / G is the Bohr magneton,  $g_e$  is the g-factor of the electron, and  $\hat{S}$  is its spin operator. The formula for the nuclear magnetic moment is similar, but the Bohr magneton is replaced by the nuclear magneton  $\mu_B = 5.05 \cdot 10^{-24}$  erg / G, and the g-factor corresponds to the specific isotope. In a semiconductor, the g-factor of a charge carrier is often very different from the g-factor of an electron in vacuum due to spin-orbit interaction (see the next paragraph). The energy difference between the eigenstates of the spin operator with projections onto an external field that differ by 1 can be written as

$$\Delta E_z = \hbar \omega_L = \hbar \gamma B \quad (1.2)$$

where  $\omega_L$  is the Larmor precession frequency of the components of the spin vector transverse to the magnetic field, and  $\gamma$  is the gyromagnetic ratio. For the electron,  $\gamma_e = g_e \mu_B / \hbar$ . In table 1.1, gyromagnetic ratios for the spins of electrons and nuclei in gallium arsenide, a model material of the present work, are given.

Electron at the bottom of conduction band, $S=1/2$ , $ g_e  \approx 0.44$	$3.87 \cdot 10^7$ rad/s·G
Electron at a deep center, $S=1/2$ , $ g_e  \approx 2$	$1.76 \cdot 10^7$ rad/s·G
Nucleus $^{75}\text{As}$ , $I=3/2$ , natural abundance 100%	$4.596 \cdot 10^3$ rad/s·G
Nucleus $^{69}\text{Ga}$ , $I=3/2$ , natural abundance 60.1%	$6.439 \cdot 10^3$ rad/s·G
Nucleus $^{71}\text{Ga}$ , $I=3/2$ , natural abundance 39.9%	$8.181 \cdot 10^3$ rad/s·G

Table 1.1. Gyromagnetic ratios for spins of electrons and nuclei in GaAs.

### 1.3. Magnetodipole interaction

The energy of magnetic interaction of two magnetic moments  $\vec{\mu}_1$  and  $\vec{\mu}_2$ , with position vectors  $\vec{r}_1$  and  $\vec{r}_2$  correspondingly, equals

$$E_{dd} = \frac{\vec{\mu}_1 \cdot \vec{\mu}_2}{r_{12}^3} - 3 \frac{(\vec{\mu}_1 \cdot \vec{r}_{12})(\vec{\mu}_2 \cdot \vec{r}_{12})}{r_{12}^5} \quad (1.3)$$

where  $\vec{r}_{12} = \vec{r}_2 - \vec{r}_1$ . The Hamiltonian of the magnetodipole interaction of two spins is obtained from Eq.(1.3) by substituting the corresponding operators instead of the classical vectors  $\vec{\mu}_1$  и  $\vec{\mu}_2$ .

Let us evaluate the characteristic scale of the energies of the magnetic dipole interaction and its possible contribution to the spin dynamics.

For two electrons localized on the donors at a distance  $r_{12} = 100\text{nm}$  (the average distance between donors at an impurity concentration of  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ), the maximum value of  $E_{dd}$  is approximately  $3 \cdot 10^{-8} \mu\text{eV}$ , and the corresponding angular frequency  $E_{dd}/\hbar$  is  $40\text{s}^{-1}$ . For neighboring lattice nuclei, the characteristic energy is of the order  $10^{-5} \mu\text{eV}$ , and  $E_{dd}/\hbar \approx 10^4 \text{ s}^{-1}$ . It is the magnetodipole interaction that determines the spin-spin relaxation in a nuclear system with characteristic times of a fraction of a millisecond. For electrons, the magnetodipole interaction, as a rule, can be neglected against the background of other interactions.

### 1.4. Hyperfine interaction

The interaction of the magnetic moments of the charge carrier and the nucleus in a semiconductor depends on which atomic orbitals the wave function of the carrier is composed of. The Hamiltonian of hyperfine interaction in an atom has the form:

$$\hat{H}_{hf}^{at} = g_0 \mu_B \hbar \gamma_N \vec{I} \cdot \left( \frac{8\pi}{3} \vec{s} \delta(\vec{r}) + \frac{\vec{l}}{r^3} - \frac{\vec{s}}{r^3} + 3 \frac{\vec{r}(\vec{s} \cdot \vec{r})}{r^5} \right) \quad (1.4)$$

For electrons near the  $\Gamma$ -point of the conduction band, with the Bloch amplitudes formed by s-type orbitals, after averaging of this Hamiltonian over the orbital wave function only the first term remains, responsible for the Fermi contact interaction [1]. As a result, the effective Hamiltonian of the hyperfine interaction takes the form

$$\hat{H}_{hf} = \sum_n v_0 A_n |\Psi(\vec{r}_n)|^2 \quad (1.5)$$

where the sum is taken over all nuclei,  $v_0$  is the volume of the primitive cell,  $\Psi(\vec{r}_n)$  is the electron envelope wave function, and  $A_n$  is the hyperfine coupling constant for the n-th nucleus. In gallium arsenide,  $A_{As} = 43.5 \pm 0.9 \mu eV$ ,  $A_{69Ga} = 43.1 \pm 1.6 \mu eV$  and  $A_{71Ga} = 54.8 \pm 2.1 \mu eV$ . The remaining terms in (1.4) are important in calculating the hyperfine interaction for holes [2, 3] and electrons at other extrema of the conduction band [4]. In particular, the hyperfine constants of holes with p-type Bloch amplitudes turn out to be approximately an order of magnitude smaller than for electrons at the G-point [3].

### 1.5. Spin-orbit interaction

The spin-orbit interaction is due to the fact that when a particle moves in an electric field  $\vec{E}$ , it is affected by a magnetic field equal to

$$\vec{B}_{SO} = \frac{1}{c} [\vec{E} \times \vec{v}], \quad (1.6)$$

where  $\vec{v}$  is the particle velocity. For an electron, this leads to the appearance of an additional term in the Hamiltonian equal to

$$g_e \mu_B \vec{B}_{SO} \cdot \hat{S} \quad (1.7)$$

This contribution can also be obtained by expansion of the Dirac equation up to terms quadratic in  $1/c^2$ .

In a crystal, electrons are exposed to a periodic potential whose gradient is a local electric field. The motion of an electron in this field leads to the appearance of a magnetic field acting on the spin of the electron; however, due to the inhomogeneity of the local field, it cannot be reduced to simple formula (1.6). Due to the complex dependence of the crystal field on the coordinates, the effect of the spin-orbit interaction on charge carriers freely moving in the crystal is easier to study not using the electrodynamic formula (1.6), but using an analogue of the Dirac equation in solid state physics, the system of equations of the Kane model. Taking into account the mixing of several nearest bands makes it possible to derive and quantitatively calculate all the main manifestations of the spin-orbit interaction. These include:

1) Renormalization of g-factors of charge carriers. The spin magnetic moment of quasiparticles - conduction electrons and holes - in many, especially narrow-gap, semiconductors, comprises a significant contribution to the orbital momentum of the electrons constituting the semiconductor atoms. As a result, the g-factor can significantly differ from 2 in absolute value and have both a positive and a negative sign. In particular, the electron g-factor in the minimum of the conduction band in GaAs is -0.44.

2) Spin-orbit splitting of electronic states at the points of band extrema. In particular, in cubic semiconductors, the valence band is split, at zero wave vector, into  $\Gamma_8$  bands (heavy and light hole subbands, with total moment  $J = 3/2$ ) and  $\Gamma_7$  (split-off band, with total moment  $J = 1/2$ ). This circumstance makes possible the optical orientation of electron spins in the conduction band and holes in the valence band upon absorption of circularly polarized light with a photon energy not exceeding  $E_g + \Delta$ , where  $E_g$  is the band gap and  $\Delta$  is the spin-orbit splitting energy (the energy difference between the tops of the  $\Gamma_8$  and  $\Gamma_7$  bands).

3) The appearance of terms odd in the wave vector in the band Hamiltonians of crystals and low-dimensional structures without an inversion symmetry. Such terms have the form [5]:

$$V_{so} = \hbar \vec{\Omega}_{so}(\vec{k}) \cdot \vec{S} \quad (1.8)$$

In the case of bulk semiconductors with a zinc blende structure, the vector  $\vec{\Omega}^{so}$ , which can be interpreted as an effective spin-orbit field similar to a magnetic field, equals

$$\vec{\Omega}_{so}(\vec{k}) = \alpha_{so} \hbar^2 \frac{\vec{\kappa}}{m \sqrt{2mE_g}} \quad (1.9)$$

where  $\kappa_x = k_x(k_y^2 - k_z^2)$ , and two other components are obtained by cyclic permutation of indices [6, 7]. In quantum wells, the vector  $\vec{\Omega}^{so}$  is linear in the in-plane wave vector and contains a contribution defined by the quantum well symmetry (structure inversion asymmetry – SIA) [8, 9], as well as a contribution from the spin-orbit field renormalized by quantum confinement (bulk inversion asymmetry – BIA) [10]. As shown in [11], the quantum well asymmetry induced by application of an electric field causes an order of magnitude larger spin-orbit SIA field, than a similar anisotropy caused by the compound composition gradient. This fact allows one to use external electric gates to control spin-orbit fields.

### 1.6. Quadrupole interactions

The quadrupole interaction arises due to the non-spherical charge distribution of the atomic nucleus. The Hamiltonian of the quadrupole interaction has the form [12]:

$$\hat{H}_q = \sum_{j,k} \left( \frac{\partial^2 V}{\partial x_j \partial x_k} \right) Q_{jk} \quad (1.10)$$

where the quadrupole moment is

$$Q_{jk} = \frac{eQ}{6I(2I-1)} \left\{ \frac{3}{2} (I_j I_k + I_k I_j) - \delta_{jk} I(I+1) \right\} \quad (1.11)$$

and  $V$  is the electrostatic potential in the vicinity of the nucleus. Thus, as a result of the quadrupole interaction, the nuclear spin energy turns out to depend on its orientation

with respect to the axes of the electric field gradient tensor. For nuclei with spin  $\frac{1}{2}$ , quadrupole interactions are absent.

The constant  $Q$  is different for different isotopes. For nuclei forming a gallium arsenide lattice,

$$\begin{aligned} Q(As^{75}) &= 0.3 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \\ Q(Ga^{69}) &= 0.23 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \\ Q(Ga^{71}) &= 0.15 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \end{aligned} \quad (1.12)$$

In cubic crystals, all elements of the electric field gradient tensor are equal to zero. They arise upon deformation and upon the introduction of atoms with a different ionic radius into the crystal lattice (for example, in solid solutions [13]). Due to the lack of inversion symmetry in GaAs and other semiconductors with the zinc blende structure, there is also a contribution to the local electric field gradient, linear in the macroscopic electric field:

$$\frac{\partial^2 V}{\partial x_j \partial x_k} = \beta_Q v_{jk,i} E_i \quad (1.13)$$

where  $v_{jk,i} = v_{kj,i} = 1$ , if  $i \neq j \neq k \neq i$ , and 0 if any of the indices coincide. The constants  $\beta$  for GaAs were experimentally determined in Ref.[14]:

$$\begin{aligned} \beta_Q(As^{75}) &= (2.0 \pm 0.2) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-1} \\ \beta_Q(Ga^{69}) &= (1.5 \pm 0.2) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-1} \\ \beta_Q(Ga^{71}) &= (1.5 \pm 0.2) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-1} \end{aligned} \quad (1.14)$$

### 1.7.Exchange interaction

The exchange interaction between the spins of two electrons is due to the anti-symmetry of their two-particle wave function with respect to the permutation of the particles. If the spin-orbit interaction does not explicitly enter the Hamiltonian of the interacting particles, their wave function can be written as the product of the coordinate and spin parts. As a result, the antisymmetric combination of spins (for electrons with

spin  $\frac{1}{2}$  this state has the total spin  $F = 0$ , being a singlet) corresponds to a symmetric orbital function, and the symmetric combination (for electrons with spin  $\frac{1}{2}$  this is a triplet with  $F = 1$ ) corresponds to an asymmetric orbital function. The electrostatic energy of a pair of particles in symmetric and antisymmetric orbital states is, generally speaking, different. This leads to the following general form of the spin Hamiltonian [15]:

$$\hat{H}_{ex} = -\frac{1}{2}J(1 + 4\vec{s}_1 \cdot \vec{s}_2) = J[1 - (\vec{s}_1 + \vec{s}_2)^2] = \begin{cases} J & F = 0 \\ -J & F = 1 \end{cases} \quad (1.15)$$

where  $J$  is the exchange constant, the magnitude and sign of which are determined by the type of interaction and the orbital wave function of the electrons. The constant  $J$  is of the order of the energy of the electrostatic interaction of two electrons multiplied by the overlap integral of the one-electron wave functions. For accurate calculation of the exchange constant, it is necessary to take into account the spatial correlation of two electrons arising due to their Coulomb interaction [16]. For the exchange interaction of electrons in a hydrogen molecule (an atomic analogue of the interaction of two electrons localized at shallow donors in a semiconductor), such a calculation was performed by Gor'kov and Pitaevsky [17, 18] and Herring and Flicker [19], who obtained the following result:

$$J = 0.82 \frac{e^2}{\epsilon a_B} \left( \frac{r}{a_B} \right)^{5/2} \exp\left( -\frac{2r}{a_B} \right) \quad (1.16)$$

where  $r$  is the distance between nuclei of the two atoms.

The exchange interaction also leads to very efficient scattering of free electrons by localized ones with mutual spin flips. The cross section for such scattering at low temperatures and moderate doping, when the wavelength of a free electron is greater than the Bohr radius of a localized electron, can be calculated using the results of the theory of scattering of slow electrons by hydrogen atoms [20]. As in the case of localized electrons, the parity of the coordinate part of the two-particle wave function is different for singlet and triplet spin states. Accordingly, the scattering amplitudes for particles in the singlet and triplet states are different. Let a localized electron be in a

state with spin up, and an incident free electron be in a state with spin down. This state of a pair of electrons can be represented as a superposition of singlet and triplet states:

$$\uparrow\downarrow = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[ \frac{1}{\sqrt{2}} (\uparrow\downarrow - \downarrow\uparrow) + \frac{1}{\sqrt{2}} (\uparrow\downarrow + \downarrow\uparrow) \right] \quad (1.17)$$

The amplitude of the pair state after scattering equals

$$\begin{aligned} \uparrow\downarrow &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left[ \frac{1}{\sqrt{2}} f_s (\uparrow\downarrow - \downarrow\uparrow) + \frac{1}{\sqrt{2}} f_t (\uparrow\downarrow + \downarrow\uparrow) \right] = \\ &= \frac{1}{2} [(f_s + f_t) \uparrow\downarrow + (f_s - f_t) \downarrow\uparrow] \end{aligned} \quad (1.18)$$

where  $f_s$  и  $f_t$  are amplitudes of singlet and triplet scattering. At the limit of small wave vector of the free electron,  $k$ , both these amplitudes do not depend on the scattering angle and are equal to [15]:

$$\begin{aligned} f_s &= k^{-1} \sin(\eta_{0s}) e^{i\eta_{0s}} \\ f_t &= k^{-1} \sin(\eta_{0t}) e^{i\eta_{0t}} \end{aligned} \quad (1.19)$$

where  $\eta_{0s}$  и  $\eta_{0t}$  are corresponding zeroth order phase shifts. The spin-flip scattering cross-section equals

$$\sigma_{sf}(k) = \frac{4\pi}{k^2} |f_s - f_t|^2 = \frac{\pi}{k^2} \sin^2(\eta_{0s} - \eta_{0t}) \quad (1.20)$$

The dependences of  $\eta_{0s}$  and  $\eta_{0t}$  on  $ka_B$ , obtained by numerical calculation for scattering off a hydrogen atom, are presented in Fig.1 of Ref.[20]. Using these curves, we can represent the dependence of the spin-flip scattering cross section on the wave vector by the approximation formula

$$\sigma_{sf}(k) \approx \frac{20.6\pi a_B^2}{1 + (3.9ka_B)^3} \quad (1.21)$$

reproducing the results of numerical calculation with the precision better than 2% at  $ka_B \leq 0.7$  [21].

### 1.8. Basic principles of optical spin orientation in semiconductors

The basic principles of the optical orientation of spins in semiconductors are described in monographs [22] and [23]. Here we give a brief overview with emphasis

on those sections that will be important for understanding the original part of the dissertation.

The optical orientation of the spins of photoexcited electrons in a direct-gap semiconductor arises upon the absorption of circularly polarized light with a photon energy  $h\nu$  satisfying the condition

$$E_g < h\nu < E_g + \Delta \quad (1.22)$$

where  $\Delta$  is the energy of spin-orbit splitting of the valence band. In the case of a bulk semiconductor with a zinc blende structure, the absorption of a right-circular polarized photon leads to the creation of an electron with a spin direction antiparallel to the wave vector of light with a probability three times higher than the probability of producing an electron with the opposite spin. As a result, photoexcited electrons have an average spin polarization of 50%. Photoexcited holes are also spin-polarized, but due to the strong spin-orbit interaction in the valence band, their spin polarization relaxes in a very short time, on the order of the momentum relaxation time.

In a p-type semiconductor, the lifetime of the electron spin polarization,  $T_s$ , is determined by the shortest of two relaxation times - the lifetime  $\tau$  (determined by recombination with the majority carriers, holes) and the spin relaxation time  $\tau_s$ :

$$T_s^{-1} = \tau_s^{-1} + \tau^{-1} \quad (1.23)$$

Under continuous optical excitation, the spin polarization of electrons is independent of its intensity and is proportional to the ratio of times  $T_s$  and  $\tau$ .

In n-type semiconductors, the spin polarization of photoexcited free electrons is transferred to resident electrons due to exchange scattering [24]. Similarly, the spin orientation of resident electrons occurs upon optical excitation of spin-polarized excitons. It is easy to estimate the time of equilibration of the average spin of free electrons with the average spin of localized ones in n-type GaAs at liquid helium temperature, using formula (1.21) for the scattering cross section [21]. It is less than 100 picoseconds already at the concentration of donors  $n_D = 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ , and then decreases inversely proportional to  $n_D$ . This estimate is close to that obtained earlier by Page [24]. Since the spin relaxation times in lightly doped n-type semiconductors typically exceed

100 picoseconds, under conditions of optical orientation, the electrons in n-type semiconductors usually form an ensemble with a uniform spin polarization. Under pulsed pumping, photoexcited holes recombine for tens or hundreds of picoseconds after the end of the pulse, and after that the lifetime of the resident electrons becomes infinite. Under such conditions, the lifetime of the electron spin polarization coincides with the spin relaxation time. Under continuous excitation, the electron lifetime is inversely proportional to the concentration of photoexcited holes, and therefore the electron spin polarization lifetime decreases with increasing pump intensity.

The dynamic polarization of nuclei by spin-polarized electrons occurs due to terms of the form  $I_+S_- + I_-S_+$  in the hyperfine interaction Hamiltonian. These terms lead to a mutual spin flip of the electron and nucleus, while conserving the total spin angular momentum of the electron – nuclear system [12]. There are several mechanisms for the dynamic polarization of nuclei during optical orientation in semiconductors (see details [1, 25]). The most common and easily realized is the Overhauser effect, which is based on the tendency of the electron spin system, brought out of equilibrium by pumping, to reach an equilibrium state by transferring the excess angular momentum to the nuclei. In this case, theoretically, the spin polarization of nuclei is related to the nonequilibrium spin polarization of electrons by the formula

$$\frac{\langle I \rangle}{I} = \frac{I+1}{S+1} \cdot \frac{\langle S \rangle - \langle S_T \rangle}{S} \quad (1.24)$$

where  $\langle S_T \rangle$  is the equilibrium value of mean electron spin. In GaAs, all nuclei have a 3/2 spin; therefore, the proportionality coefficient in Eq.(1.24) is 5/3. In practice, the polarization of nuclei is usually lower due to various relaxation processes.

In a zero external magnetic field, the nonequilibrium spin polarization of the nuclei relaxes within the time  $T_2 \sim 10^{-4} s$  determined by the dipole-dipole interaction between the spins of closely spaced nuclei. In the presence of an external field, nuclear spin polarization has two relaxation times,  $T_2$  and  $T_1$ . Time  $T_1$  characterizes the relaxation of the nuclear spin component along an external field; it is usually much longer than  $T_2$ . The efficiency of the dynamic polarization of nuclei under optical orientation is usually insufficient to achieve a noticeable polarization of nuclear spins characterized by the

relaxation time  $T_2$ . Therefore, the optical orientation of nuclear spins requires the application of an external field. In this case, an average nuclear spin is created, parallel or antiparallel to the external field and proportional to the projection of the nonequilibrium electron spin on this field. Due to the hyperfine interaction, spin-polarized nuclei create an effective magnetic field - the Overhauser field - acting on electron spins and also directed parallel or antiparallel to the external magnetic field. The Overhauser field is proportional to the average spin of the nuclei:

$$B_N = \frac{\sum_n x_n A_n \langle I_n \rangle}{\mu_B g_e} \quad (1.25)$$

where  $n$  numerates different isotopes,  $x_n$  is the content of  $n$ -th isotope in the crystal. Due to the negative  $g$ -factor of electrons and positive hyperfine constants for all isotopes, in gallium arsenide the Overhauser field is opposite to the average spin of the nuclei. Its maximum value at full polarization of all nuclear spins is approximately 5.3 Tesla.

### 1.9. Spin relaxation mechanisms of electrons in semiconductors

By the beginning of the research included in the thesis, the spin relaxation of electrons during optical orientation in cubic direct-gap semiconductors was quite well studied in  $p$ -type materials. A review of these studies, as well as a detailed presentation of the theory of spin-orbit relaxation of free electrons (Elliot-Yafet and Dyakonov-Perel mechanisms) and electron relaxation due to scattering by holes (the Bir-Aronov-Picus mechanism), are given by Titkov and Picus in chapter 3 of the monograph “Optical orientation” [7]. The mechanism of electron spin relaxation by nuclear spin fluctuations was theoretically considered by Dyakonov and Perel [26, 1].

The Elliott-Yafet mechanism (electron spin flip at the moment of scattering by an impurity or phonon due to spin-orbit interaction) appears to be significant only in narrow-gap semiconductors (e.g., InSb) with strong spin-orbit interaction. It is also important in strong magnetic fields when other relaxation mechanisms are suppressed. This situation is typical for experiments on classical EPR, but not for optical orientation.

The Dyakonov – Perel mechanism (DP) [27, 7] is due to the precession of the electron spin in the effective spin – orbit field (see Eq.(1.8)), which arises when the electron moves in a crystal or in a low-dimensional structure without an inversion center. In the case of frequent collisions, the relaxation rate is given by the dynamic averaging formula:

$$\tau_s^{-1} \sim \Omega_{SO}^2 \tau_p \quad (1.26)$$

where  $\tau_p$  is the momentum relaxation time. The DP mechanism determines the rate of spin relaxation of free electrons in most cases, with the exception of heavily doped p-type semiconductors.

The Bir-Aronov-Picus mechanism is due to the exchange scattering of electrons by holes (free or bound to acceptors). The relaxation rate is proportional to the hole concentration; accordingly, this mechanism dominates in heavily doped p-type semiconductors.

Scattering by nuclear spin fluctuations does not make a significant contribution to the spin relaxation of free electrons [1, 2, 28]. On the contrary, for localized electrons this mechanism is very effective. As in the DP mechanism, relaxation is due to the precession of the electron spin in effective magnetic fields created by random configurations of nuclear spins associated with hyperfine interaction with a localized electron. In the case of localization of an electron in a quantum dot at a low temperature, the electron spin interacts with a static fluctuation of nuclear spins, and its dynamics reduces to a precession in the Overhauser field  $B_N$  created by this fluctuation. Such a regime was theoretically considered by Merkulov et al. [29], and was observed by time resolution spectroscopy in [30]. On average, over an ensemble of quantum dots, precession in random fields leads to a decrease in the initial polarization of electrons to 1/3 of the initial value. The application of a longitudinal magnetic field exceeding the characteristic field of nuclear fluctuation restores the initial polarization of the electrons.

For a short correlation time of the spin of a localized electron (caused, for example, by an electron hopping between different localization centers), spin relaxation occurs in the dynamic averaging mode: the spin polarization decreases exponentially with the

decay time  $\tau_s^{-1} \sim \langle B_{Nf}^2 \rangle \tau_c$  [26]. This regime is considered in detail in Chapter 3. In Ref.[31], a controlled transition between the regimes of long and short correlation times was experimentally realized: the correlation time was varied by adjusting the concentration of free electrons in the structure, which shortened  $\tau_c$  of localized electrons due to exchange scattering.

### 1.10. Spin relaxation mechanisms of nuclei in semiconductors

As mentioned above, the nuclear spin system is characterized by two relaxation times,  $T_1$  and  $T_2$ . The spin – spin relaxation time  $T_2$  characterizes the relaxation of the nonequilibrium angular momentum due to anisotropic spin – spin interactions (mainly dipole – dipole interactions). In magnetic fields much stronger than local fields of neighboring nuclei, it is the decay time of the components of the average nuclear spin transverse to the magnetic field, which oscillate at the Larmor frequency. For most solids, this time falls in the range of  $10^{-5} - 10^{-2}$  seconds; for gallium arsenide and other III – V semiconductors,  $T_2 \sim 10^{-4}$  seconds.

The spin-lattice relaxation time  $T_1$  characterizes the energy relaxation of the nuclear spin system. In a strong magnetic field, the Zeeman interaction makes the main contribution to the energy of nuclear spins; therefore,  $T_1$  parametrizes the decay of the nuclear magnetization component along the external magnetic field. In contrast to  $T_2$ ,  $T_1$  has a very wide range of values, from milliseconds to days. In solids at sufficiently low temperatures, the condition  $T_1 \gg T_2$  is usually satisfied. For many semiconductors,  $T_1$  was measured in strong magnetic fields by nuclear magnetic resonance (NMR) methods [12]. Under these conditions, it is determined by the quadrupole interaction with phonons or, in heavily doped semiconductors, by the Korringa mechanism — spin-flip electron scattering on the Fermi surface by nuclear spin fluctuations. Optical orientation allows one to study spin-lattice relaxation in semiconductors in the region of weaker magnetic fields, including the fields lower than the local field of spin-spin interactions. Paget performed such studies in lightly doped gallium arsenide by the method of optically detected NMR in a magnetic field of 3 kG, which still significantly exceeded

local fields [32]. As the main mechanisms of spin-lattice relaxation, he determined the hyperfine interaction with electrons localized on donors for nuclei near donor centers, and spin diffusion to donors for nuclei in the bulk of the crystal. The mechanism of quadrupole relaxation of nuclei near the donor center due to fluctuations of the charge state of the donor as a result of electron capture and recombination under optical excitation was also proposed in [33]. By the beginning of the research included in this thesis, practically nothing was known about spin-lattice relaxation of nuclei in even weaker magnetic fields in III – V and II – VI semiconductors.

*This chapter is mainly a literature review. A part of the information presented is based on the author works [11,21,25,30].*

## **Chapter 2. Anisotropic exchange interaction of localized conduction-band electrons in non-centrosymmetric semiconductor crystals and structures**

The exchange interaction of two localized electrons belonging to the conduction band (for example, bound on shallow donors) was considered isotropic for a long time and was described by the Heisenberg spin Hamiltonian:

$$\hat{H}_{ex} = -2J(\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2) \quad (2.1)$$

where  $J$  is the exchange integral determined by the envelope wave functions of localized states.

However, in the case of non-centrosymmetric crystals or structures, Eq.(2.1) is incorrect. The reason for this is the terms in the Hamiltonian of the conduction band, odd in the wave vector, arising in such structures as a result of spin-orbit interaction (see Chapter 1, Eq.(1.8)). Such terms lead to the appearance of an effective magnetic field  $\vec{\Omega}_{so}(\vec{k})$  (Eq.1.9) acting on the spin of an electron as it moves. As a result, when an electron moves from point A to point B, its spin rotates by a certain angle, and when moving at the same speed from point B to point A, it rotates by the same angle in absolute value, but in the opposite direction. The same thing happens when electron is tunneling between two potential wells. Let us consider two electrons localized in identical depressions of the potential relief — for example, at two closely located donor centers or in a pair of tunnel-coupled quantum dots. By virtue of Fermi statistics, the two-particle wave function of the stationary state during the permutation of particles must pass into itself with the opposite sign. In the case of electrons in a vacuum, this requirement is known to be satisfied by states with either parallel or antiparallel spins of two electrons (for different parities of the orbital wave function). It is these states (triplet and singlet) that give the energy levels of an electron pair. The splitting between these levels, due to the Coulomb interaction, determines the exchange integral  $J$ . In the case of quasiparticle electrons in a crystal with terms odd in  $k$  in the effective Hamiltonian, the spin direction of each of electrons changes when it is moving to an adjacent potential well. Therefore, stationary two-particle states will be those for which the spin of one electron is parallel or antiparallel to the spin of another electron transferred to the potential well where the first electron is located. The spin

Hamiltonian, for which such states are eigenvalues, is obtained from the Heisenberg Hamiltonian (Eq.2.1) by turning the first and second spins through a certain angle  $\gamma/2$  in opposite directions around the spin-orbit field  $\vec{\Omega}_{so}(\vec{k}_{12})$ , which would arise if the electron moved in a straight line from one of the potential wells to another [34]:

$$\begin{aligned}\hat{H}_{ex}^{SO} &= -2J(\vec{S}_1^{\gamma/2} \cdot \vec{S}_2^{-\gamma/2}) = \\ &= -2J[(\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2)\cos\gamma + (\vec{d} \cdot \vec{S}_1)(\vec{d} \cdot \vec{S}_2)(1 - \cos\gamma) + \vec{d} \cdot [\vec{S}_1 \times \vec{S}_2]\sin\gamma]\end{aligned}\quad (2.2)$$

where  $\vec{d} = \vec{\Omega}_{so}(\vec{k}_{12}) / |\vec{\Omega}_{so}(\vec{k}_{12})|$ .

It contains three terms. The first is the usual isotropic interaction. The second has pseudodipole interaction symmetry, and the third - Dzyaloshinskii-Moria interaction [35, 36]. We note that the spectrum of Hamiltonian (Eq.2.2) preserves the singlet-triplet structure, but the stationary states corresponding to these level groups are no longer eigenstates of the total spin of two electrons. Thus, in contrast to the usual scalar exchange interaction, the exchange interaction in structures without an inversion symmetry does not preserve the total angular momentum of the interacting quasiparticles.

The angle  $\gamma$  can be found in the limit of large distances between localization centers using the asymptotic behavior of the wave function of a localized electron [21].

The Hamiltonian of a pair of localized electrons has the following form

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{so}, \quad (2.3)$$

where

$$\hat{H}_0 = \frac{\hbar^2}{2m}k_1^2 + \frac{\hbar^2}{2m}k_2^2 + V(\vec{r}_1) + V(\vec{r}_2) + U_c(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \quad (2.4)$$

$$\hat{H}_{so} = \hbar\vec{\Omega}_{so}(\vec{k}_1) \cdot \hat{S}_1 + \hbar\vec{\Omega}_{so}(\vec{k}_2) \cdot \hat{S}_2 \quad (2.5)$$

Here  $U_c(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)$  is the operator of Coulomb interaction between electrons, and  $V(\vec{r})$  is a spin-independent localization potential.

Due to the smallness of the spin-orbit terms, they practically do not affect the binding energy and the behavior of the electron wave function near the localization center. However, the asymptotic behavior of the wave function is seriously changing.

The behavior of the wave function at large distances from the center, where the localizing potential is close to zero, can be obtained in the semiclassical approximation [37]. The wave function at a distance from the center greater than some (arbitrary)  $r_0$  is approximately written as

$$\Psi \propto \exp\left(\frac{iS(\vec{r})}{\hbar}\right), \quad (2.6)$$

where  $S(\vec{r}) = \hbar \int_{r_0}^r \vec{k} d\vec{r}'$  is the action, the integral is taken along the straight-line trajectory starting from the center, and the wave vector is found from the condition

$$\frac{(\hbar k)^2}{2m} + \hbar \vec{\Omega}_{so}(\vec{k}) \cdot \vec{S} = E - U(\vec{r}) \quad (2.7)$$

At large distances from the center the potential energy  $U(\vec{r})$  can be neglected. Using the smallness of spin-orbit terms, one can approximate  $k$  as  $k = k_0 + \Delta k$ , where

$k_0 = \sqrt{\frac{2m(E - U(r))}{\hbar^2}} \approx i\sqrt{\frac{2mE_B}{\hbar^2}}$ , and  $E_B$  is the electron binding energy. The spin-orbit

correction  $\Delta k$  is found from the condition  $\frac{\hbar^2 k_0 \Delta k}{m} + \hbar \vec{\Omega}_{so}(\vec{k}_0) \cdot \vec{S} = 0$ , that yields

$\Delta k = \frac{m \vec{\Omega}_{so}(\vec{k}_0) \cdot \vec{S}}{\hbar k_0}$ . Since  $\vec{\Omega}_{so}$  is an odd function of the wave vector,  $\Delta k$  is real-valued.

Finally, one obtains:

$$\Psi \propto \exp\left(-\sqrt{\frac{2mE_B}{\hbar^2}} r\right) \exp\left(i \frac{m \vec{\Omega}_{so}\left(\sqrt{\frac{2mE_B}{\hbar^2}} \frac{\vec{r}}{r}\right) \cdot \vec{S}}{\sqrt{2mE_B}} r\right) \quad (2.8)$$

The spin-dependent factor in this expression has the form of a finite rotation operator for spin  $S$ . Therefore, if the state of a localized electron is such that its spin has a certain direction near the center (its projection onto a certain axis is  $1/2$ ), then at the point offset from the center by a vector  $\vec{r}$ , the spin will be rotated by an angle

$$\gamma(\vec{r}) = \frac{m\Omega_{SO} \left( \sqrt{\frac{2mE_B}{\hbar^2}} \frac{\vec{r}}{r} \right) r}{\sqrt{2mE_B}} \quad (2.9)$$

around the spin-orbit field. By substitution into Eq.(2.9) of the inter-center distance  $r_{12}$  instead of  $r$ , we obtain the angle  $\gamma$  in Eq.(2.2).

In the case of spin-orbit terms linear in the wave vector, which is characteristic of quasi-two-dimensional systems, one can obtain an analytical expression for the angle  $\gamma$  for an arbitrary distance between localization centers [38], under the additional condition that the localizing potential of each center is symmetric to the inversion with respect to the straight line connecting the centers.

In this case, the spin-orbit terms in the Hamiltonian can be represented as:

$$\hat{H}_{SO} = \sum_{\eta, \xi} A_{\eta\xi} (k_{1\xi} \hat{S}_{1\eta} + k_{2\xi} \hat{S}_{2\eta}) \quad (2.10)$$

where the matrix  $A_{\eta\xi}$  is determined by the properties of the structure (including the relative contribution of bulk (BIA) or structural (SIA) inversion symmetry breaking).

Let X denote the axis connecting the localization centers in the structure plane XY. The rotation of the electron spin as it moves from one center to another, discussed above, is defined by the unitary operator

$$\hat{T} = \exp\left(i \sum_{\alpha} P_{\alpha} (S_{1\alpha} x_1 + S_{2\alpha} x_2)\right) \quad (2.11)$$

It is easy to verify that on transforming the Hamiltonian given by Eq.(2.3) by this operator, the spin orbit terms  $\sum_{\eta} A_{\eta\alpha} (k_{1\alpha} S_{1\eta} + k_{2\alpha} S_{2\eta})$  disappear, if the matrix  $P_{\alpha}$  is chosen

in the form  $P_{\alpha} = \frac{2m}{\hbar^2} A_{\alpha}$ :

$$\hat{T} \hat{H} \hat{T}^{-1} = \hat{H}_0 - \frac{m}{\hbar^2} \sum_{\alpha} A_{\alpha}^2 + \sum_{\eta} A_{\eta y} (k_{1y} S'_{1\eta} + k_{2y} S'_{2\eta}) \quad (2.12)$$

where  $S'_{n\eta} = \hat{T} S_{n\eta} \hat{T}^{-1}$ .

Since the matrix elements of the operator  $k_y = -i \frac{\partial}{\partial y}$  on eigenfunctions of the ground state of  $\hat{H}_0$  are zero due to the symmetry of the localizing potential, they do not affect

the exchange interaction. Thus, the transition to a “twisted” coordinate system defined by the unitary operator  $\hat{T}$  reduces the problem to the usual exchange interaction of localized electrons. The transition back to the laboratory frame leads to Hamiltonian (2.2) with an angle  $\gamma$  equal to

$$\gamma = \frac{2m}{\hbar^2} \sqrt{\sum_{\eta} A_{\eta x}^2} r_{12} \quad (2.13)$$

In cubic crystals, the spin-orbit field is proportional to the third power of the wave vector:

$$\vec{\Omega}_{SO}(\vec{k}) = \alpha_{SO} \hbar^2 \frac{\vec{k}}{m \sqrt{2mE_g}} \quad (2.14)$$

where  $\alpha_{SO}$  is a dimensionless constant, and the components of the vector  $\vec{\kappa}$  are defined as

$$\kappa_x = k_x (k_y^2 - k_z^2) \quad (2.15)$$

(two other components are obtained by permutation of indices).

By substituting these expressions into Eq.(12.9), we obtain the rotation angle

$$\gamma(\vec{r}) = \alpha_{SO} \sqrt{\frac{E_B}{E_g}} \frac{r}{a_B} |\vec{\kappa}_r| / r^3 \quad (2.16)$$

where  $\vec{\kappa}_r$  is obtained from Eq.(2.15) by replacement of the wave vector components with corresponding spatial coordinates, and  $a_B = (\sqrt{2mE_B / \hbar^2})^{-1}$ . In case of Coulomb centers (e.g. shallow donors), the latter is the electron Bohr radius.

### Main results of Chapter 2:

1. It has been theoretically shown that the exchange interaction of localized conduction electrons in non-centrosymmetric semiconductors and semiconductor structures is anisotropic.
2. The interaction Hamiltonian has the form of a scalar product of spins rotated relative to each other by an angle increasing with the distance between the localization centers.

3. In systems with spin-orbit terms linear in the wave vector, this angle is directly proportional to the distance, at any distance between the centers.
4. In the general case, the proportionality to the distance is valid asymptotically, at large (much greater than the electron localization radius) distances between the centers.

*The studies that make up the contents of this chapter are published in [21, 34, 38].*

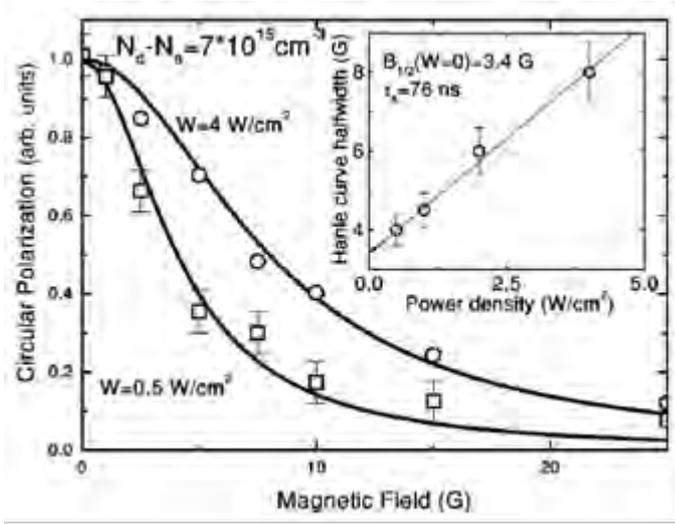
## **Chapter 3. Electron spin relaxation in n-type semiconductors at low temperatures**

With the development of research on semiconductor spintronics in the 1990s, interest arose in semiconductor systems with long lifetimes of nonequilibrium spin states, which were considered necessary for operation, in particular, of spin transistors. In the direct-bandgap III-V and II-VI semiconductors, most convenient from the point of view of heterostructure technology, spin relaxation times are usually quite short (less than or of the order of a nanosecond). However, as was found in Refs.[39, 40], in n-type gallium arsenide with a donor concentration near  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$  these times can be much longer, on the order of a hundred nanoseconds. The question arose as to what was limiting the lifetime of a nonequilibrium spin in n-type semiconductors, and what values it could reach [41]. This issue was investigated in the author's works on which this chapter is based.

### **3.1. Experimental studies of electron spin relaxation at low temperature in n-type GaAs in weak magnetic fields.**

For an experimental study of the dependence of the electron spin relaxation time in n-type semiconductors on the concentration of donors [42], gallium arsenide was chosen as a model object. The optical orientation of electron spins in this material has been studied quite well previously. The Hanle effect — depolarization of luminescence by a transverse magnetic field — was used as a measuring tool. The half-width of the Hanle curve in an n-type semiconductor is known to grow with the power of the exciting light, following the linear dependence (Fig. 3.1) [1]. The cutoff of the linear dependence when the pump power tends to zero gives the spin relaxation time of the resident electrons, in accordance with the relation:

$$\frac{1}{\tau_S} = \frac{\mu_B g}{\hbar} B_{1/2}(P \rightarrow 0) \quad (3.1)$$



**Figure 3.1** The Hanle curve and the dependence of its half-width on the pump intensity in a bulk sample of gallium arsenide with the donor concentration  $n_D = 7 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$

We studied 16 samples containing bulk n-GaAs layers of various thicknesses grown by molecular beam, liquid, and gas-phase epitaxy. The range of donor concentrations ranged from  $1 \cdot 10^{14}$  up to  $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . For samples with concentrations from  $1 \cdot 10^{14}$  up to  $4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ , the recovery curves of luminescence polarization in a longitudinal field were also measured. This made it possible to estimate the correlation time of the spin of an electron localized on the donor [1] from the relation

$$\frac{1}{\tau_c} = \frac{\mu_B g}{\hbar} B_R \quad (3.2)$$

where  $B_R$  is the magnetic field at which the polarization grows two times due to suppression of spin relaxation.

All measurements were performed by modulating the circular polarization of the exciting light by a photoelastic modulator at a frequency of 26.6 kHz in order to avoid the effects of dynamic polarization of nuclei and equilibrium polarization of electron spins in an applied constant magnetic field. Measurements were performed at temperatures of 4.2 and 2K. The results of measurements of the spin relaxation time are presented in Fig.3.2 by empty circles (in order not to overload the graph, only the data obtained at 4.2K are shown; the results at 2K differ slightly). They make it possible to distinguish three regimes that differ in the dependence of the spin relaxation time  $\tau_s$  on the concentration of donors  $n_D$ . At low concentrations ( $1 \cdot 10^{14} \div 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ) it grows

rapidly with increasing  $n_D$  (regime 1). At concentrations in the  $2 \cdot 10^{15} \div 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  range, the increase of  $\tau_s$  stops, giving way to a slow decrease (regime 2). Finally, at  $n_D > 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , where the semiconductor becomes degenerate (metallic phase), a monotonous decrease is observed, approximately inversely proportional to the squared concentration of donors (regime 3).

In Fig.3.2 our measurements in this range are complemented by data from Ref.[40], which allow us to trace this tendency up to  $n_D > 5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Maximum values of  $\tau_s$ , about 200 ns, were measured at  $n_D = 2 \div 4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  and at  $n_D = 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . In Fig. 3.2, data of recent measurements performed by V.V.Belykh [44] (shown by blue diagonal crosses) and J. G. Lonnemann et al. [45] (straight brown crosses) are shown for comparison.

The correlation time  $\tau_c$  (triangles) demonstrate rapid shortening with the growth of  $n_D$ , up to, at least,  $4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . Above this concentration,  $\tau_c$  becomes so short that in order to observe an increase of polarization, one should apply strong magnetic fields (stronger than 1T), which produce considerable shifts of photoluminescence lines, hindering correct interpretation of experimental results.

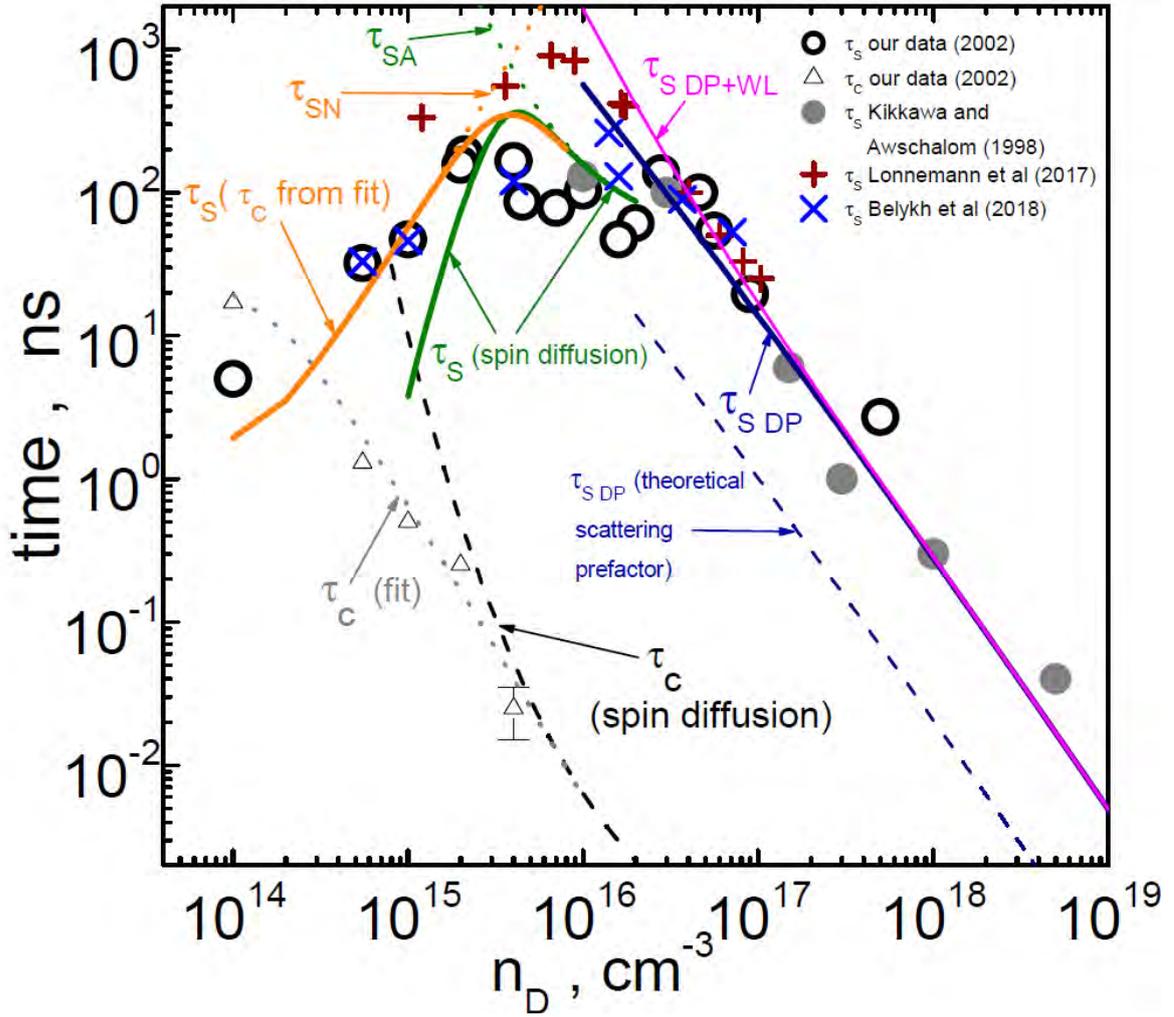


Figure 3.2 Dependence of spin relaxation and correlation times on donor concentration in n-GaAs at low temperatures (2-6.5K). Symbols: experimental data, obtained by the author (empty circles ( $\tau_s$ ) and triangles ( $\tau_c$ )) and taken from literature. Lines: grey dotted – approximation of the measured dependence of the correlation time  $\tau_c$  on donor concentration; grey dashed – theoretical dependence of  $\tau_c$  in the model of exchange spin diffusion; orange solid -  $\tau_s$ , calculated from measured correlation time with account for relaxation by nuclei and anisotropic exchange; orange dotted – contribution of the hyperfine interaction ( $\tau_{SN}$ ); green solid – theoretical dependence, taking into account hyperfine and spin-orbit relaxation under exchange spin diffusion; green dotted – contribution of anisotropic exchange ( $\tau_{SA}$ ). Dark blue solid line shows theoretical dependence of the relaxation time by Dyakonov-Perel mechanism under scattering by charged impurities, with the prefactor of the relaxation time of 3-rd angular harmonic of the momentum distribution ( $\tau_3$ ) taken from comparison with  $\tau_3$ , experimentally measured in Ref.[43] for  $n_D = 3.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . Dark blue dashed – the same with theoretical prefactor. Magenta line – Dyakonov-Perel mechanism with weak localization correction [43].

The qualitative interpretation of these three regimes of electron spin relaxation is as follows: regime 1 — relaxation due to hyperfine interaction with the spins of the lattice nuclei; regime 2 — relaxation due to anisotropic exchange interaction of electrons localized on donors with each other; regime 3 — relaxation of free electrons on the Fermi surface by the Dyakonov-Perel mechanism. The transition from regime 1 to regime 2 in the dielectric phase occurs as the correlation time decreases due to the acceleration of flip-flop transitions between the spins of electrons localized on neighboring donors as a result of their exchange interaction. In this case, on the one hand, due to the dynamic averaging of fluctuating nuclear fields, the coupling of electronic and nuclear spins is weakened; on the other hand, frequent flip-flop transitions lead to a loss of spin orientation due to the weak anisotropic part of the exchange interaction. The transition from regime 2 to regime 3 occurs as a result of the Mott transition from dielectric to metal conductivity with delocalization of electrons and formation of a Fermi surface. The theoretical consideration of spin relaxation in these three modes is given in the next section.

### 3.2. Theoretical description of electron spin relaxation at low temperatures in GaAs and similar n-type semiconductors

#### 3.2.1. Relaxation in metallic phase (Dyakonov-Perel mechanism)

If the Fermi energy  $E_F \gg k_B T$ , the non-equilibrium spin accumulates in a narrow energy strip at the Fermi surface. For this reason, one can assume the electron energy equal to  $E_F = (3\pi^2)^{2/3} \hbar^2 n_e^{2/3} / 2m_e$ , where  $n_e$  and  $m_e$  are concentration and effective mass of itinerant electrons. The spin relaxation time, defined by the Dyakonov-Perel mechanism, equals [27, 7]:

$$\tau_S^{DP} = \frac{105}{32} \alpha^{-2} \frac{\hbar^2 E_g}{E_F^3 \tau_3} = \frac{105}{32} \alpha^{-2} \frac{\hbar^2 E_g}{(3^{2/3} \pi^{4/3} \hbar^2 n_e^{2/3} / 2m_e)^3 \tau_3} = \frac{35}{12\pi^4} \frac{E_g m_e^3}{\hbar^4 \alpha^2 \tau_3} \frac{1}{n_e^2} \quad (3.3)$$

where  $\tau_3$  is the relaxation time of 3-rd angular harmonic of momentum distribution:

$$\tau_3^{-1} = 2\pi N v_F \int_0^\pi \sigma(\theta) (1 - P_3(\cos \theta)) \sin \theta d\theta \quad (3.4)$$

Here  $N$  is the concentration of scatterers,  $v_F$  is the Fermi velocity,  $\sigma(\theta)$  is the partial scattering cross-section,  $P_3$  is the 3-rd Legendre polinomial:  $P_3(\cos \theta) = (5\cos^3 \theta - 3\cos \theta)/2$ . For comparison, the momentum relaxation time is defined as

$$\tau_p^{-1} = 2\pi N v_F \int_0^\pi \sigma(\theta) (1 - P_1(\cos \theta)) \sin \theta d\theta \quad (3.5)$$

where  $P_1(\cos \theta) = \cos(\theta)$ .

In the future, we will assume that all donors are ionized, and the degree of compensation is small, so that  $N = n_e = n_D$ . At low temperatures, the dominant scattering mechanism in bulk degenerate semiconductors is scattering by charged impurities. In this case, the partial cross section  $\sigma(\theta)$  is determined by scattering by the screened Coulomb potential, and in the Born approximation it is equal to [46]:

$$\sigma(\theta) = \frac{R^*}{4E_F k_F^2} \cdot \frac{1}{[\sin^2(\theta/2) + x^2]^2} \quad (3.6)$$

where  $R^* = m_e e^4 / (2\varepsilon^2 \hbar^2)$  is the effective Ridberg,  $x = 1 / (2r_D k_F) = (3\pi^5 a_B^3 n_D)^{-1/6}$ ,  $k_F = \sqrt{2m_e E_F} / \hbar$  is the Fermi wave vector,  $r_D = \frac{1}{2} \left( \frac{\pi a_B^3}{3n_D} \right)^{1/6}$  is the radius of screening by degenerate electron gas, and  $a_B = \frac{\hbar^2 \varepsilon}{m_e e^2}$  is the effective Bohr radius of an electron in the semiconductor.

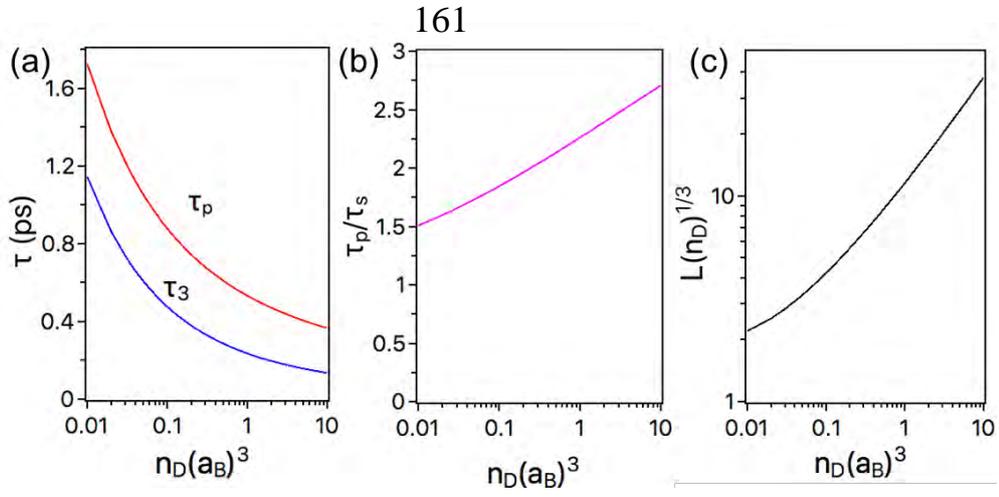
From Eqs. (3.4) – (3.6) one obtains expressions for times  $\tau_3$  and  $\tau_p$ :

$$\begin{aligned} \tau_3 &= \frac{12\sqrt{2}\pi^2 \hbar}{R^*} F_3^{-1}(x) \\ \tau_p &= \frac{12\sqrt{2}\pi^2 \hbar}{R^*} F_1^{-1}(x) \end{aligned} \quad (3.7)$$

where

$$\begin{aligned} F_3(x) &= 2\pi \int_0^\pi \frac{1 - P_3(\cos \theta)}{[\sin^2(\theta/2) + x^2]^2} \sin \theta d\theta = 8\pi \left[ 6(1 + 5x^2 + 5x^4) \ln \left( 1 + \frac{1}{x^2} \right) - 5x^2 - \frac{(5x^2 + 4)^2}{1 + x^2} \right] \\ F_1(x) &= 2\pi \int_0^\pi \frac{1 - P_1(\cos \theta)}{[\sin^2(\theta/2) + x^2]^2} \sin \theta d\theta = 8\pi \left[ \ln \left( 1 + \frac{1}{x^2} \right) - \frac{1}{1 + x^2} \right] \end{aligned} \quad (3.8)$$

Fig.3.3a shows the dependences of  $\tau_3$  and  $\tau_p$  on the dimensionless concentration of donors  $a_B^3 n_D$ , and Fig.3.3b shows their ratio in the same coordinates. Fig. 3.3c shows the mean free path as a function of dimensionless concentration; as can be seen from the figure, the mean free path exceeds the average distance between impurities, but at minimum concentrations within the metal phase, this excess is small - about 3 times.



**Figure 3.3** Dependences of the relaxation times of the first and third angular harmonics of the momentum distribution (a), their ratio (b) and mean free path (c) on the concentration of donors in a degenerate semiconductor.

As seen from Fig.3.3b, the ratio of times  $\tau_3$  and  $\tau_p$  within the relevant range of impurity concentrations (in GaAs  $a_B = 9.6\text{nm}$ , so that  $a_B^3 n_D = 0.01$  corresponds to  $n_D = 1.13 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-3}$ ) does not reach the asymptotic value  $1/6$ , corresponding to scattering by very small angles ( $\theta \ll 1$ ). For this reason, the expression of spin relaxation rate through  $\tau_p$ , given in Ref. [7], gives an incorrect result in the studied concentration range.

Substituting parameters of gallium arsenide into Eq.(3.3), we obtain

$$\tau_{S\_GaAs}^{DP} = \frac{1.8 \cdot 10^{10}}{\alpha^2 \tau_3 n_D^2} \quad (3.9)$$

A comparison of theory with experiment is shown in Fig.3.2. In the studied concentration range,  $\tau_3$  weakly depends on  $n_D$ . Therefore, Eq.(3.9) gives  $\tau_s$  approximately inversely proportional to the square of the concentration of donors, in full agreement with the experimental results. However, if we use the dependence  $\tau_3(n_D)$  with the prefactor calculated in the Born approximation (Eq.3.7), a significant quantitative discrepancy arises with the experimental data (blue dashed curve in Figure 3.2). Moreover, the times  $\tau_3$  obtained in this way themselves do not agree with those obtained experimentally in [43], where  $\tau_3$  was determined from the curves of suppression of spin relaxation by a longitudinal magnetic field. Calibration of the dependence  $\tau_3(n_D)$  on the experimental value of  $\tau_3(3.7 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-3}) = 40 \text{fs}$  gives good

agreement between the theoretically calculated and experimentally measured  $\tau_3(n_D)$  in the entire concentration range. The agreement becomes even better if we take into account the correction to  $\tau_3$  due to the weak localization effect [43], which is proportional to  $n_D^{-1}$  and comprises about 60% [43] (the magenta curve in Figure 3.2).

Note that, in contrast to the relaxation time of the 3rd angular harmonic  $\tau_3$ , the relaxation time of the first harmonic of the momentum distribution,  $\tau_p$ , calculated from Eq.(3.7), is in good agreement with values of the order of 1 picosecond obtained from transport measurements in Ref.[45] for  $n_D \approx 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . The same contradiction was revealed in our work [47] for the Dyakonov – Perel mechanism in lightly doped n-type gallium arsenide at higher temperatures (77 and 300 K). A significant (more than an order of magnitude) mismatch was observed between the relaxation times of the momentum distribution obtained from transport measurements and from the suppression of spin relaxation by a longitudinal field. The reason for this is unclear, but the observed systematic mismatch casts doubt on the adequacy of the determination of the Dresselhaus spin – orbit constant from a comparison of the spin relaxation rate with the electron transport parameters. Therefore, in this work, we use the value  $\alpha = 0.063$  corresponding to the energetic constant  $\gamma_D = 36 \text{ eV} \cdot \text{\AA}^3$ , measured in Ref.[48] from spin-flip Raman scattering spectra.

### 3.2.2. Relaxation in dielectric phase

#### 3.2.2.1. Spin relaxation of donor-bound electrons in the absence of external magnetic field

In the absence of an external magnetic field, spin relaxation is limited by the transfer of the angular momentum to the lattice. Ultimately, this always happens due to anisotropic interactions. For localized electrons, there are two ways: to transfer the angular momentum through hyperfine interaction to the nuclei (which will then drop it into the lattice through the anisotropic dipole-dipole interaction) or directly send it to the lattice through spin-orbit interaction. At low temperatures, the last possibility is realized by flip-flop transitions with the participation of anisotropic exchange

interaction — such a process does not require the emission or absorption of phonons. The mechanism of electron spin relaxation due to hyperfine interaction was proposed in 1973 by Dyakonov and Perel [26]. Since an electron localized on a shallow donor interacts with a large number (of the order of  $10^5$ ) of nuclei, the root-mean-square fluctuation of the total spin of these nuclei amounts to several hundred. Such a spin fluctuation can be considered quasiclassically, and the interaction of the electron spin with the spins of nuclei in the region of its localization can be represented as the action of the Overhauser field created by nuclear spin fluctuation on the electron. As a result, the electron spin experiences Larmor precession around the fluctuation field of nuclei. In an ensemble of uncoupled localization centers (quantum dots or sparsely located donors in a very weakly doped semiconductor), this leads to the disappearance of the average spin components perpendicular to nuclear fluctuations at each center. Averaging over the ensemble of components of the electron spins longitudinal with respect to the nuclear fluctuation fields gives the residual polarization of the electrons equal to  $1/3$  of the initial one. The initial polarization decays to the  $1/3$  level during a time of the order of the precession period of the electron spin in the nuclear fluctuation field [29]. Such a relaxation regime was observed in time-resolved experiments in an ensemble of quantum dots [30].

In the ensemble of electrons localized at donors, as a rule, another spin relaxation regime is realized, which was originally considered by Dyakonov and Perel [26, 1]. This is the regime of dynamic averaging, in which the electron spin manages to make only a small part of the revolution around the fluctuation nuclear field during the so-called correlation time. The correlation time is determined by the angular momentum-conserving spin transfer processes between localization centers. After this time, the electron spin is likely to be localized at another center and, accordingly, will be affected by a fluctuating nuclear field that is not correlated with what acted on it before. The sequential effect of uncorrelated random fields, each of which acts on the spin for a short time, leads to its exponential relaxation with the decrement given by the well-known dynamic averaging formula [5]:

$$\tau_{SN}^{-1} = \frac{2}{3} \langle \omega_f^2 \rangle \tau_c \quad (3.10)$$

where  $\langle \omega_f^2 \rangle$  is the mean squared frequency of the electron spin precession in the nuclear fluctuation field (for a shallow donor in GaAs  $\langle \omega_f^2 \rangle^{1/2} \approx 2 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$  [26]), and  $\tau_c$  is the correlation time of the electron spin. In a magnetic field applied along the mean spin of electrons, the spin relaxation is suppressed, obeying a Lorentzian law:

$$\tau_{SN}^{-1}(B) = \frac{\tau_S^{-1}(0)}{1 + B^2 / B_R^2} \quad (3.11)$$

where  $B_R = \hbar / \mu_B g_e \tau_c$  [1].

Dyakonov and Perel [26] suggested that the correlation time is due to electron hopping to unfilled donor centers. The results of our experiments (in particular, the absence of a significant difference of relaxation times measured at temperatures of 2K and 4.2K) indicate that, at helium temperatures, the correlation time is determined by flip-flop transitions between the spins of electrons localized on different donors. Such transitions, due to the exchange interaction of localized electrons, are not accompanied by charge transfer. Therefore, the energy change during a flip-flop transition is much smaller than during hopping (the energy of spin-spin interactions in the impurity band is two to three orders of magnitude lower than the characteristic energies of electrostatic interactions). As a result, spin transitions do not require the participation of phonons and, at low temperatures, proceed at a much higher rate than hopping ones. A comparative estimate of the rates of spin-flip and hopping transitions for n-GaAs was given in [21]

The correlation time due to the exchange interaction between electrons localized on donors can be estimated as [21]:

$$\tau_c \approx \hbar / \langle J \rangle \quad (3.12)$$

where  $\langle J \rangle$  is the mean value of the exchange interaction constant. For hydrogen-like centers, the exchange constant is given by Gor'kov-Pitaevskii-Herring-Flicker formula [17-19] (see Chapter 1):

$$J_{ij} = 0.82 \frac{e^2}{\epsilon a_B} \left( \frac{r_{ij}}{a_B} \right)^{5/2} \exp\left( -\frac{2r_{ij}}{a} \right) \quad (3.13)$$

where  $a_B$  is the Bohr radius of the donor-bound electron, and  $r_{ij}$  is the distance between donor centers  $i$  and  $j$ .

Due to the exponential dependence of the exchange constant on the distance between the impurities, its value for various pairs of donors fluctuates strongly. Calculating the mean value of  $\langle J \rangle$ , it is reasonable to use the results of percolation theory and substitute the quantity  $\langle r \rangle = 0.865n_D^{-1/3}$  instead of  $r_{ij}$  in (3.13) [37]. Thus, close pairs of donors and isolated centers are excluded from consideration, and donors belonging to an infinite cluster, along which the spin diffusion due to flip-flop transitions occurs, are taken into account. This way, the following dependence of the correlation time on the concentration of donors is obtained:

$$\tau_c = 1.75 \frac{\hbar \epsilon a_B}{e^2} (a_B n_D^{1/3})^{5/2} \exp\left( \frac{1.73}{a_B n_D^{1/3}} \right) \quad (3.14)$$

As can be seen from Fig. 3.2, formula (3.14) well reproduces the experimentally measured values of  $\tau_c$  at a concentration of donors  $n_D > 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . Thus, spin relaxation in this concentration range turns out to be closely related to spin diffusion in the impurity band. Accordingly, the correlation time can be associated with the spin diffusion coefficient  $D_s$  [21]:

$$\tau_c \approx (3n_D^{2/3} D_s)^{-1} \quad (3.15)$$

At lower values of  $n_D$ , the model of spin diffusion over an infinite cluster ceases to work, and the correlation time is limited by other processes. As such, we can indicate the exchange interaction in clusters of finite size or interaction with free electrons [21].

Relaxation by nuclear spin fluctuations in the regime of dynamic averaging is always characterized by an extension of the spin relaxation time with an increase in the concentration of donors due to shortening of the correlation time. As can be seen from Fig.3.2, a calculation according to formula (3.10) with an experimentally determined correlation time gives good quantitative agreement with the measured electron spin

relaxation times at  $n_D < 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . However, at higher concentrations, not only a quantitative, but also a sharp qualitative discrepancy with the experimental results is observed: the measured relaxation times begin to shorten with increasing doping. This indicates a transition to another mechanism of spin relaxation due to the anisotropy of the exchange interaction

The exchange interaction of localized electrons in a non-centrosymmetric semiconductor is described by the Hamiltonian (2.2). As discussed in Chapter 2, a flip-flop transition under the influence of such a Hamiltonian is accompanied by rotation of the spin by an angle  $\gamma(\vec{r})$  around the axis, determined by the orientation of the straight line connecting the donors relative to the crystalline axes. In the regime when the correlation time of the electron spin at the donor is determined by spin diffusion (as shown above, this mode is realized in n-GaAs at  $n_D > 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ), the spin during diffusion experiences a large number of small random rotations determined by formula (2.9). Since the rotation angle in the asymptotic region (i.e., for  $r \gg a_B$ , which is true for the vast majority of donor pairs in dielectric GaAs with  $n_D < 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) is proportional to  $r$ , it is convenient to introduce a spin-orbit length  $L_{SO}$  satisfying the condition

$$\sqrt{\left\langle \left[ \gamma \left( L_{SO} \frac{\vec{r}}{r} \right) \right]^2 \right\rangle} = 1, \text{ where the angle } \gamma \text{ is averaged over the directions of the vector } \vec{r}.$$

The spin-orbit length is determined by the constant at odd in the wave vector terms in the Hamiltonian of the conduction band, as well as by the binding energy of a localized electron. Substituting the expression for the angle  $\gamma$  from formula (2.12), we obtain after averaging over the angles:

$$L_{SO} = \frac{\sqrt{35}}{2} \alpha_{SO}^{-1} \sqrt{\frac{E_g}{E_B}} \cdot a_B \quad (3.16)$$

For electrons bound at shallow donors in bulk gallium arsenide, the spin – orbit length is approximately 7 nm, which is comparable to the experimentally measured spin diffusion length (10 nm) [39]. Using this parameter, one can write the angle of rotation of the spin averaged over the angle as  $\langle \gamma^2(r) \rangle^{1/2} = r / L_{SO}$ . The memory of the

initial spin direction is lost when the accumulated rotation angle  $\Gamma$  becomes about 1 radian:

$$1 \approx \Gamma^2 = \sum_i \gamma_i^2 = \sum_i \left( \frac{r_i}{L_{SO}} \right)^2 = \frac{1}{L_{SO}^2} \sum_i r_i^2 = \frac{3L_{DS}^2}{L_{SO}^2} = \frac{3D_S \tau_{SA}}{L_{SO}^2} \quad (3.17)$$

Here  $L_{DS} = D_S \tau_{SA}$  is the diffusion length of the electron spin, and  $\tau_{SA}$  is the time of spin relaxation due to the anisotropy of the exchange interaction. From Eq.(3.17) we obtain the expression for the spin relaxation time in terms of the spin diffusion coefficient and spin-orbit length:

$$\tau_{SA} \approx \frac{L_{SO}^2}{3D_S} = L_{SO}^2 n_D^{2/3} \tau_c \quad (3.18)$$

Using Eqs. (3.14) and (3.15), we can express the spin relaxation time through the correlation time and, ultimately, through the concentration of donors:

$$\tau_{SA} \approx 1.75 \frac{\hbar \epsilon a_B}{e^2} \left( \frac{L_{SO}}{a_B} \right)^2 (n_D a_B^3)^{3/2} \exp\left( \frac{1.73}{n_D^{1/3} a_B} \right) \quad (3.19)$$

The total spin relaxation time is determined by the sum of the hyperfine and spin-orbit contributions to the relaxation rate:

$$\tau_S = (\tau_{SN}^{-1} + \tau_{SA}^{-1})^{-1} \quad (3.20)$$

Figure 3.2 shows the dependences of the times  $\tau_{SA}$  (dotted green curve) and  $\tau_S$  (solid green curve), calculated in the spin diffusion model, on the concentration of donors. In the range of donor concentrations  $2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3} < n_D < 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , it gives qualitative and quantitative (within a significant scatter of the available data, but in the absence of any fitting parameters) agreement with the experiment, and a sharp qualitative mismatch in the region of low concentrations,  $n_D < 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . This is due to the fact that in this region spin diffusion over an infinite cluster becomes too slow and ceases to determine spin dynamics (in particular, the correlation time calculated by Eq.(3.14) becomes longer than the electron spin precession period in the characteristic field of nuclear spin fluctuation, equal to about 5 ns). However, the spin relaxation times even at weak doping remain longer than 5 ns, and the correlation times measured from the polarization recovery in a longitudinal magnetic field are much shorter. As mentioned

above, this can presumably be associated with the exchange interaction in clusters of finite sizes.

No adequate quantitative theory for this concentration range was proposed so far, but the experimentally measured spin relaxation times are well reproduced by Eqs. (3.10), (3.18) and (3.20) with the correlation time measured by the electron spin polarization recovery under optical orientation in a longitudinal magnetic field. In Figure 3.2, the dependence  $\tau_{SN}(n_D)$  obtained this way is shown by the orange dotted curve, and  $\tau_S(n_D)$  by the solid orange curve.

The observed significant (by an order of magnitude) difference in relaxation times in the range of donor concentrations  $10^{15} \text{ cm}^{-3} < n_D < 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , measured in Refs. [42, 44], on the one hand, and in Ref.[43], on the other, is most likely due to the difference in the structures used. In [43], the studied gallium arsenide layers were embedded between specially doped barriers to eliminate depletion effects in the near-surface region. In [42] and [44], bulk layers and double heterostructures with uniform doping were used. Under conditions of optical excitation, photo-induced electron transfer between the barriers and the active layer could occur, as a result of which either a part of the donors could be emptied, or, conversely, the additional delocalized electrons can appear. This inevitably leads to a change in the correlation time of the spin of electrons bound at the donors [21] and, as a consequence, to a change in the rate of their spin relaxation. As shown in [31], the change of  $\tau_S$  in this case can be very significant, up to two orders of magnitude.

### ***3.2.2.2. Spin relaxation of donor-bound electrons in longitudinal external magnetic field***

Anisotropic exchange interaction leads to relaxation of the nonequilibrium spin polarization of electrons, but does not provide energy transfer to the lattice. The same is true for relaxation by nuclei - in this case, the energy is exchanged only with the nuclear spin system, whose heat capacity is small and the energy relaxation time is very long. Therefore, in a longitudinal magnetic field, when the introduction of the angular momentum into the spin system is accompanied by a change in its Zeeman energy, spin

relaxation can be characterized by two relaxation times – of the nonequilibrium spin,  $T_2$ , and of the energy,  $T_1$ , similar to what happens in the spin system of lattice nuclei. Under the condition  $T_2 \ll T_1$ , the spin system can be characterized by the spin temperature  $\theta$ , which can differ from the lattice temperature  $T$ .

As follows from Eqs. (3.11) and (3.12), the relaxation of the angular momentum is suppressed in such magnetic fields at which the electron Zeeman energy becomes greater than the characteristic energy of spin-spin interactions. The latter is growing exponentially with donor concentration. Therefore, with an increase in doping, one can expect the appearance of a range of magnetic fields in which the relaxation of the nonequilibrium angular momentum has not yet been suppressed, while the transfer of Zeeman energy to the lattice is already difficult. In this case, a biexponential dynamics of the longitudinal electron spin relaxation after excitation by a short pulse of circularly polarized light should be observed [21]. First, during the time  $T_2$ , the spin temperature is established. In this case, the average electron spin decreases from the initial value  $S_0$  to the quasi-equilibrium value

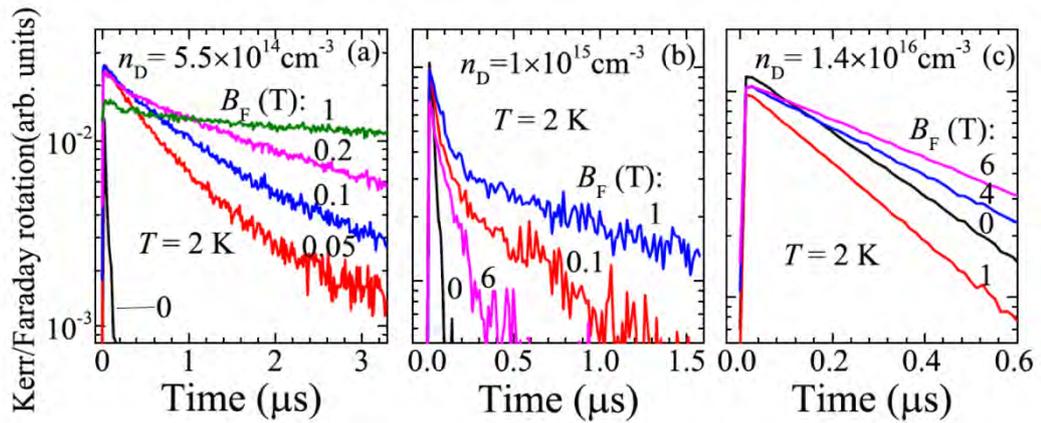
$$S_\beta = \frac{1}{4} \mu_B g_e B \beta = S_0 \frac{B^2}{B^2 + B_L^2} \quad (3.21)$$

where the local field  $B_L = 2(Sp\{H_{SS}^2\})^{1/2} / \mu_B g_e$  characterizes the heat capacity of the energy reservoir of spin-spin interactions with the Hamiltonian  $H_{SS}$ , and  $\beta = \frac{1}{k_B \theta}$  is the inverse spin temperature of the electrons, which is established after the distribution of the initial Zeeman energy between the Zeeman and spin-spin reservoirs [21]. Further relaxation occurs due to decrease of  $\beta$  and is characterized by time  $T_1$ .

Such experiments were performed by VV Belykh using the photoinduced Faraday / Kerr rotation method with an extended range of time resolution [44]. In n-GaAs crystals with  $n_D \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ , a two-timescale spin dynamics was indeed distinctly observed (see Fig. 3.4), which was absent both at lower impurity concentrations (where spin-spin interactions are too weak) and at large ones, where the electrons begin to delocalize, and the difference between  $T_1$  and  $T_2$  disappears. However, the experimental

dependence of the amplitudes of the fast and slow components on the magnetic field is much less sharp than the theoretical one given by Eq. (3.21). Perhaps this is due to the exponential spread of the exchange interaction energies in the impurity band, which leads to the absence of a single parameter — the local field — characterizing the spin-spin energy reservoir.

The blocking of energy relaxation by a longitudinal magnetic field is clearly manifested in the dependence of  $T_1$  on the longitudinal field strength, which is most clearly observed in lightly doped n-GaAs with  $n_D = 5.5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  [44].



**Figure 3.4** Time dependence of the Faraday / Kerr rotation signals reflecting the spin dynamics of resident electrons after excitation by a short circularly polarized light pulse for various magnetic fields and donor concentrations. The experiments of VV Belykh from [44].

The energy relaxation of the spin system of localized electrons requires the participation of electron transitions with the absorption or emission of phonons. The only such transitions possible at low temperatures are electron hops within the pairs formed by filled and empty donor centers. As shown in [21], there exist “optimal” pairs, which interact effectively with phonons, having the electron energy difference of the order of the phonon energy with the wave vector equal to the reciprocal Bohr radius of the donor (tenths of a millielectron-volt). Since the number of optimal pairs is small, the energy of the electron spin system is transported to such pairs by spin diffusion. A similar model of spin-lattice relaxation is well known for spin systems of nuclei in solids, where sparsely located paramagnetic centers play the role of energy sinks into the lattice. The rate of spin-lattice relaxation limited by diffusion is determined by the Khutsishvili – De Gennes relation [49, 50]:

$$T_D^{-1} = 4\pi D_s a_c n_c \quad (3.22)$$

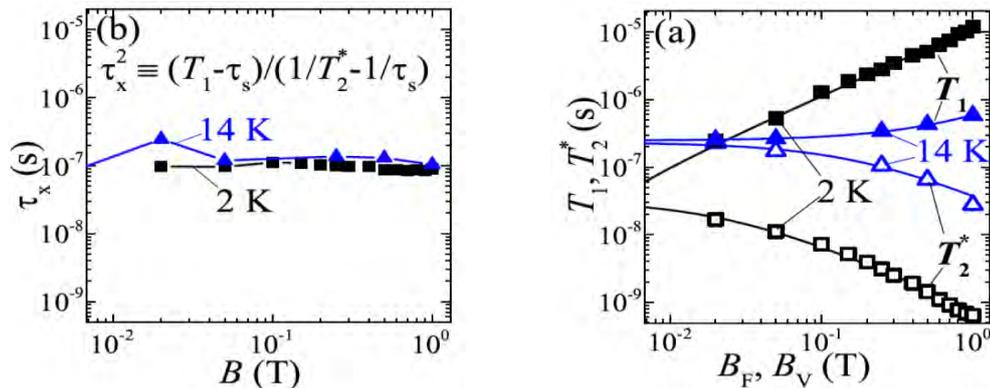
where  $a_c$  is the effective radius of the relaxation center, and  $n_c$  is the concentration of centers. Substituting the mean distance between donors for  $a_c$  and the concentration of optimal pairs  $n_p$  for  $n_c$ , and expressing the spin diffusion coefficient via the correlation time along Eq. (3.15), we obtain

$$T_D \approx \frac{n_D}{4n_p} \tau_c \quad (3.23)$$

In a strong magnetic field,  $B > \langle J \rangle / \mu_B g_e$ , the correlation time, determined by the probability of a flip-flop transition between neighboring donors, begins to lengthen with increasing magnetic field due to the spread of g-factors localized on electron donors. The presence of such a spread is indicated by a linear increase in the decrement  $(T_2^*)^{-1}$  of the decay of spin beats in a transverse magnetic field (Fig. 3.5). An independent measurement of the spread of g-factors from the dependence  $T_2^*(B)$  allows us to calculate the correlation time, which is determined by the power spectrum  $b_{ex}^2(\omega)$  of random fields of the exchange interaction, acting on each electron spin from the neighbors:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau_c} &\approx \frac{(\langle g_e \rangle \mu_B)^2}{\hbar^2} \langle b_{ex}^2(\omega) \rangle_g = \frac{1}{\hbar^2} \langle J^2 \rangle \frac{\hbar}{\mu_B B} \int \rho_g^2 \left( \frac{\hbar \omega}{\mu_B B} \right) d g_e = \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \langle J^2 \rangle \frac{\hbar}{\mu_B \delta g_e B} \approx \frac{T_2^*}{\tau_c^2(B=0)} \end{aligned} \quad (3.24)$$

Here  $\rho_g$  is the distribution function of the electron g-factor, and  $\delta g_e = \left( \int \rho_g^2 d g \right)^{-1}$  is the width of this distribution, which determines  $(T_2^*)^{-1}$ .



**Figure 3.5** The dependence of times of longitudinal ( $T_1$ ) and transverse ( $T_2$ ) spin relaxation of electrons, as well as of their product, on magnetic field in lightly doped  $n$ -GaAs. Experiments of V.V.Belykh [44].

It follows from Eqs. (3.23) and (3.24) that

$$T_2^* T_D \approx \frac{n_D}{4n_p} \tau_c^2(B=0) \quad (3.25)$$

As can be seen from Fig.3.5b, the product  $T_2^* T_D$  remains constant when the magnetic field changes by more than two orders of magnitude. Relation (Eq.3.25) allows, knowing  $\tau_c(B=0)$ , to determine the concentration of optimal pairs, which turns out to be equal to  $3.5 \cdot 10^{-3} n_D$ , which is consistent with the estimate given in [21].

Thus, although in weak magnetic fields spin relaxation in lightly doped gallium arsenide is not related to spin diffusion and occurs locally, in small donor clusters, with an increase in the magnetic field the role of spin diffusion increases due to the suppression of relaxation due to the blocking of Zeeman energy transfer to the lattice. In strong magnetic fields, the rate of spin relaxation is limited by exchange diffusion to sparse relaxation centers.

### Main results of Chapter 3:

1. Spin relaxation of electrons in doped n-type semiconductors at low temperatures has been studied theoretically and experimentally (using gallium arsenide as an example),
2. It is shown that, in a zero magnetic field, relaxation is determined by three mechanisms that replace each other with increasing concentration of donor impurities. At low donor concentrations, this is relaxation due to hyperfine interaction with lattice nuclei. With increasing concentration (in n-GaAs – at  $n_D > 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ), the spin-orbit mechanism begins to dominate, due to the anisotropy of the exchange interaction between localized electrons. In the metal phase (in n-GaAs – at  $n_D \approx 2 \div 4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ), spin relaxation occurs due to the Dyakonov-Perel mechanism.
3. In a longitudinal magnetic field in lightly doped semiconductors, relaxation slows down due to the blocking of the transfer of Zeeman spin energy to the lattice. The spin-lattice relaxation time is determined by spin diffusion to sparse pairs of

closely located charged and neutral donors, where energy is transferred to the lattice during tunnel hops with absorption or emission of a phonon.

4. At higher doping (in n-GaAs – at  $n_D \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ), the spin-spin interaction between the electrons becomes strong enough, so that the spin temperature can be established in the ensemble of electron spins. This is manifested in the appearance of two very different relaxation times in the longitudinal field, which characterize the establishment of the spin temperature and its relaxation to the lattice temperature.

*The studies that make up the contents of this chapter are published in Refs.[21, 41- 44, 47].*

## **Chapter 4. Non-perturbing optical methods for measuring the nuclear spin system magnetization**

Semiconductors and semiconductor structures provide a unique opportunity to create a high spin polarization of nuclei by the optical orientation method, or, more precisely, by dynamic polarization of nuclear spins by optically oriented electron spins [1, 13, 25]. Polarized nuclear spins create an effective magnetic field (Overhauser field), which splits electronic spin states, with the energies of spin splitting reaching hundreds of microelectron-volts, which is equivalent to the action of an external magnetic field with a strength of several Tesla. This makes it possible to measure nuclear polarization by optical methods. In fact, it is measuring the splitting of electronic states by the Overhauser field. Historically, first such methods were based on the modification of the circular polarization of luminescence under conditions of optical orientation of electron spins by the Overhauser field — the Hanle effect and circular polarization recovery by a longitudinal effective magnetic field [13]. Then, with the development of experimental techniques, measurements of the frequency of electron spin beats by pump-probe spectroscopy and direct measurement of electron spin splitting from luminescence spectra in single quantum dots began to be applied (see the review in [25]).

All these methods require optical excitation of real interband transitions with the generation of charge carriers. Therefore, they are inevitably associated with a perturbation of the nuclear spin system under study due to carrier-induced spin relaxation, dynamic polarization, and the influence of the Knight field. This became one of the reasons why the properties of the spin-polarized nuclear semiconductor system, left to itself, i.e. not interacting with nonequilibrium charge carriers created in the process of optical sounding, remained practically unexplored. Thus, such important properties of the nuclear spin system as the mechanisms of spin-lattice relaxation and spin temperature formation remained unknown even for such a model semiconductor as gallium arsenide - while a dynamically coupled electron-nuclear

system supported by optical pumping of electrons was investigated in detail [13]. Chapters 5 and 6 are devoted to the study of spin-lattice relaxation and the thermodynamics of a nuclear spin system using gallium arsenide as a model. This chapter will describe the experimental methods used to this end, some of which are based on the phenomena that were first observed in our work.

#### **4.1. Off-resonant Faraday rotation by the Overhauser field**

The usual Faraday effect - the rotation of the plane of polarization of linearly polarized light when passing through a transparent medium in a magnetic field directed along the light beam - is due to the optical transitions energy splitting for photons polarized along the right and left circles. In our experiments, a similar effect was realized in an effective field formed by the sum of the external field and the Overhauser field of previously optically oriented nuclear spins. Such an effect was theoretically considered by Artemova and Merkulov [51]. According to their estimation, to observe the effect, it is necessary that the length of the optical path in a semiconductor layer with polarized nuclei be of the order of one millimeter. It is difficult to polarize nuclei optically to such a depth because of the high absorption coefficient of the pumping light, which should have a quantum energy greater than the band gap. The main difference between the scheme of our experiment and the proposal of Artemova and Merkulov is the use of a microcavity structure. This allowed us, due to multiple passage, to reduce the thickness of the probed layer by 3 orders of magnitude.

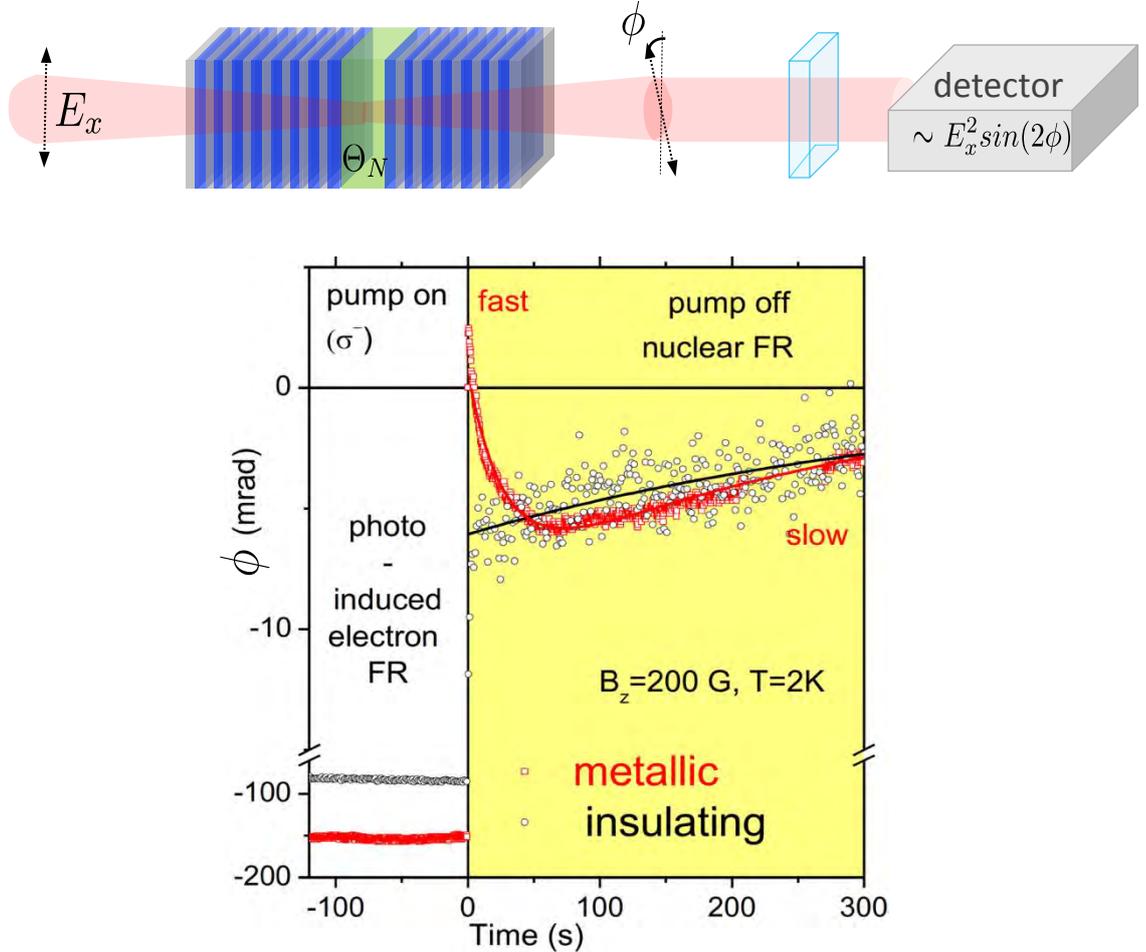
In the first experiments to detect and study the nuclear field-induced Faraday effect, we used structures with an n-doped active GaAs layer in a microcavity formed by Bragg reflectors of 25 (front mirror) and 30 (rear mirror) pairs of AlAs and  $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$  layers, with optical thickness of  $3/2$  wavelength at a photon mode energy of 1.497 eV. This position of the photon mode of the resonator provided a detuning of 18 meV from the band edge (determined by the luminescence maximum), so that the probe light fell into the transparency region of gallium

arsenide. In this case, the effective thickness of the optical path of the probe light in the active layer was 0.7 mm, with the actual layer thickness of 358 nm.

The experiment was carried out as follows. The nuclear spins were pumped by circularly polarized radiation from a semiconductor laser at a wavelength of 780 nm (photon energy 1.59 eV, exceeding the band gap of gallium arsenide), corresponding to the first minimum of the reflection coefficient of the front Bragg mirror above the stop band. During the pumping, a constant magnetic field of 200 G was turned on, directed along the normal to the plane of the structure. The pump was turned on for a period of 1 to 30 minutes. The probing was carried out by spectrally wide linearly polarized radiation of a pulsed laser, centered at the wavelength of the photon mode of the cavity. The rotation angle of the light transmitted through the microcavity was recorded, for which various polarimetric schemes were used (in particular, using a photoelastic polarization modulator, a Glan prism and an avalanche photodiode as a detector, or a circuit with a balanced detector based on a Wollaston prism and a photodiode bridge). During pumping, a significant Faraday rotation from spin-polarized electrons was observed, which also depended on the degree of polarization of nuclear spins [52]. After switching off the pump, a slowly decaying Faraday rotation signal was observed, induced by nuclear spin polarization (Fig. 4.1).

In the case of the active layer in the metallic phase ( $n_D=2\cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ), the nuclear Faraday rotation signal consists of two components of the opposite sign, which have very different relaxation times. In the case of dielectric GaAs ( $n_D=2\cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ) as the active layer, only one slow component was observed [53].

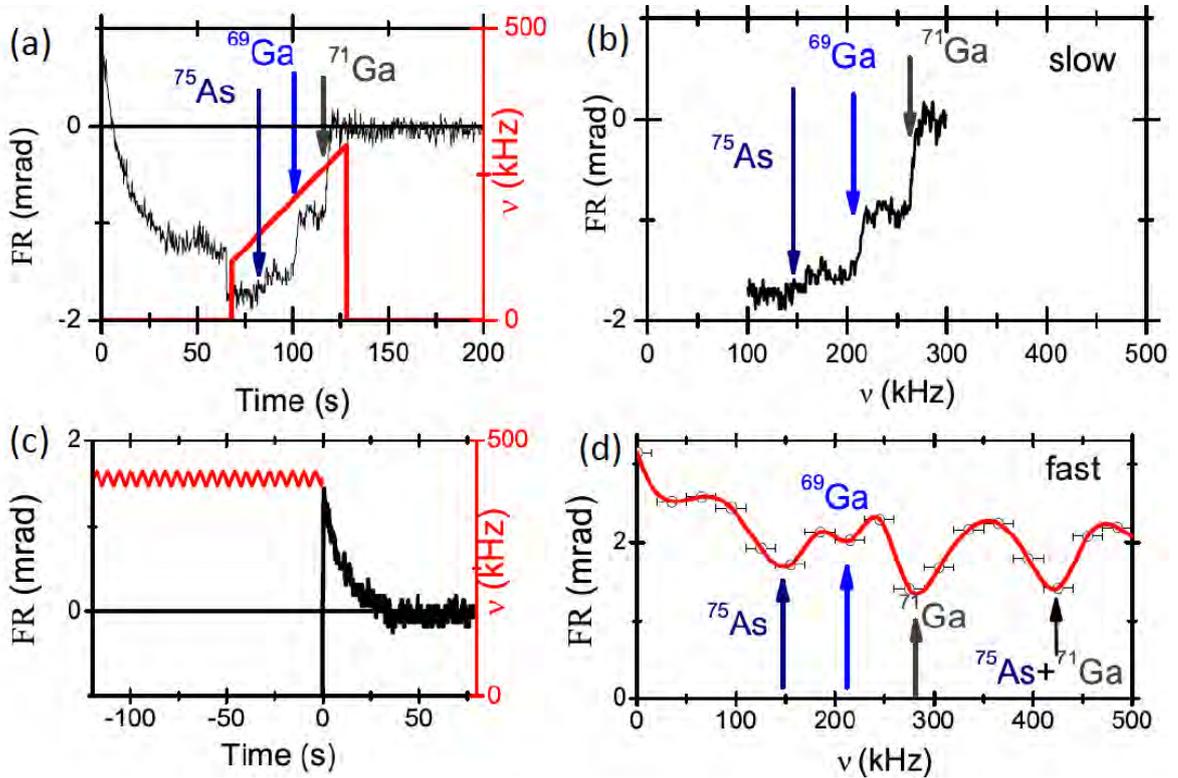
To prove that this signal was due to the spin polarization of nuclei, experiments were performed on optically detected nuclear magnetic resonance. The NMR experiment procedure for the fast and slow components of the Faraday rotation was



**Figure 4.1** Faraday rotation induced by Overhauser field in n-GaAs. a) experimental design (description in the text). b) Faraday rotation angle as a function of time.

different. For the slow component, the radio-frequency field  $B_{RF}$  with an amplitude of 2.5 G was turned on 100 seconds after switching off the pump. The frequency of  $B_{RF}$  was scanned from 100 kHz to 300 kHz (Fig. 4.2a). In this case, a constant magnetic field  $B = 200$  G was kept switched on. When the frequency of  $B_{RF}$  passed through the resonance of each of the three isotopes, a sharp decrease in the Faraday rotation signal was observed (Fig. 4.2b). In the case of the fast component, this approach was not possible due to its rapid decay. In this case,  $B_{RF}$  of the same amplitude (2.5 G) and a fixed frequency was applied during pumping. To enhance the effect of the radio frequency field under conditions of inhomogeneous

broadening of resonances, frequency modulation of  $B_{RF}$  with a span of 30 kHz was used. Figure 4.2d shows the dependence of the amplitude of the fast component on the frequency of  $B_{RF}$ . The resonances of all three isotopes are also visible here, as well as the combined resonance of arsenic and gallium-71 nuclei.



**Figure 4.2** Nuclear magnetic resonance detected from Faraday rotation by an Overhauser field. a) the signal of the “slow” component of the Faraday rotation as a function of time. The red line shows the frequency of the alternating magnetic field. b) the same as a function of frequency. c) a scheme of the influence of an alternating field on the “fast” component. d) the amplitude of the “fast” component as a function of the frequency of the alternating field applied during pumping.

The two components of nuclear Faraday rotation observed in n-type gallium arsenide on the metallic side of the dielectric-metal transition demonstrate two mechanisms that generate the Faraday rotation signal. The sense of rotation of the plane of polarization in the slow component, together with the fact that its amplitude increases with increasing pump time in the range of hundreds or even thousands of seconds allows us to confidently associate it with the polarization of nuclear spins far from impurity centers. Such spins, filling the entire volume of the active layer, create an Overhauser field that splits the states of the conduction band, and it is with this splitting that the observed signal is associated. The expression for the effective

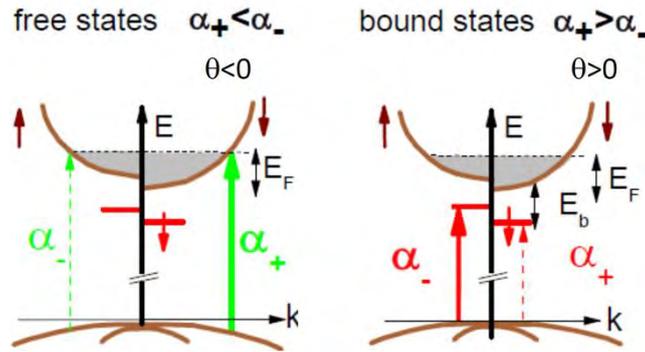
Verdet constant in this case (which coincides, up to a numerical factor, with the result of Artyomova and Merkulov) was obtained by M. M. Glazov [53]:

$$V_N^f = - \frac{e^2 \hbar}{12 m c n} \frac{g_e \mu_B}{4 \sqrt{\delta}} \sum_{h=hh, lh} \left( \frac{2 \mu_h}{\hbar^2} \right)^{3/2} \quad (4.1)$$

Here  $n$  is the background refraction index of the crystal,  $\delta$  is the detuning of the photon energy of the probe from the bandgap,  $\mu_h$  is the reduced mass of the electron-hole pair comprising a heavy ( $hh$ ) or light ( $lh$ ) hole.

The origin of the fast component is not so obvious. A short relaxation time of nuclear spin polarization is characteristic of nuclei located near paramagnetic impurity centers [12, 49, 50]. It is natural to assume that neutral donors act as such centers in an n-type semiconductor. However, the fast component was observed in a semiconductor with an impurity concentration slightly higher than the insulator-metal transition, where the electrons are mainly delocalized and form, at low temperature, a Fermi gas. Therefore, it is most likely due to electrons bound at doubly charged clusters formed by pairs of closely spaced donors. The interaction of the spin of a localized electron with an electron gas (see Chapter 3) leads to a short correlation time of the spin of a localized electron, of the order of 10 picoseconds. Under these conditions, the relaxation of the nuclear spins under the influence of the Knight field of a localized electron occurs in a time of the order of 10 seconds, in accordance with the observed decay time of the fast component. A longer (about 300 picoseconds) correlation time of the electron spin in the dielectric phase leads to characteristic nuclear relaxation times of fractions of a second, i.e. beyond the time resolution of the experimental setup; this is probably why the fast component in the structure with the active layer of dielectric GaAs was not observed. Chapter 6 will discuss the relaxation of nuclear spins at various levels of doping in more detail. The fact that the fast component has the opposite sign with respect to the slow component, which is produced by extended conduction-band states, is also important here. This difference is explained by another mechanism for the formation of the Faraday signal - due to the Pauli blockade of the optical transition to the lowest

spin sublevel of a localized electron. Fig. 4.3 explains the difference between the

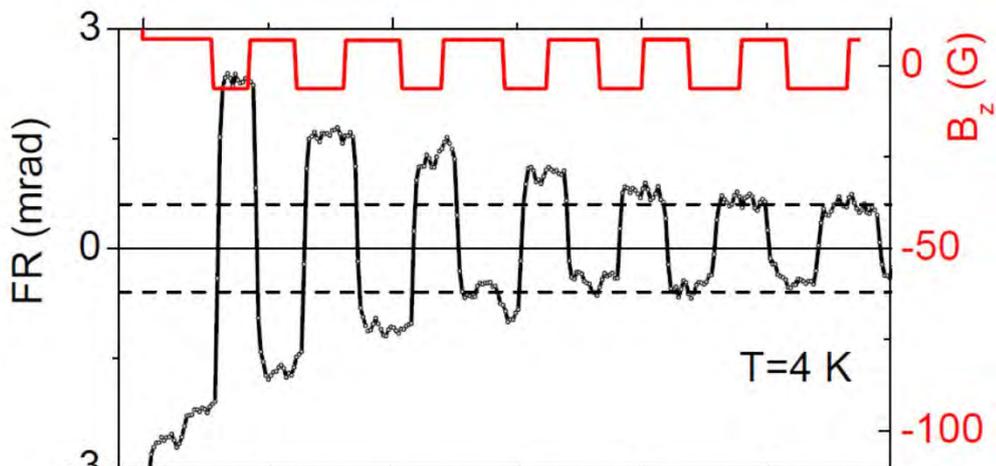


**Figure 4.3** Relative intensities of optical transitions between valence band and conduction band (left) and between valence band and localized states occupied by an electron (right).

signs of the Faraday effect for extended and localized states: in the first case, the optical transition to the lowest of the states split by the Overhauser field, which make the main contribution to the Faraday effect, is more efficient, and in the second, less efficient.

Figure 4.4. shows the magnetization reversal registered by the Faraday effect of cooled nuclear spins when the sign of the external magnetic field changes (see more details in chapter 5).

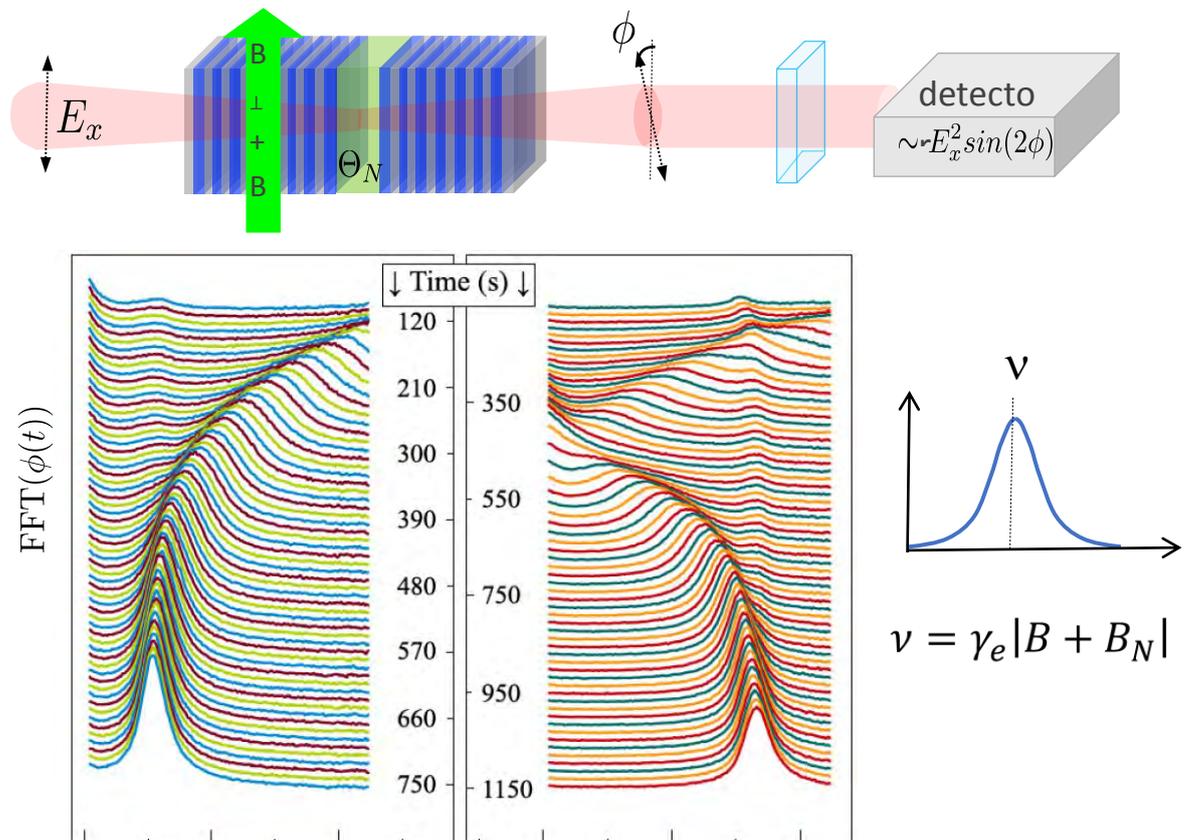
Thus, the off-resonant Faraday effect induced by the Overhauser field makes it possible to detect the polarization of nuclei both in the bulk of the semiconductor and near the electron localization centers, and to study the time and magnetic field dependences of nuclear magnetization in real time.



**Figure 4.4** Faraday rotation under reversal of the external field. The decaying signal is due to the Overhauser field.

## 4.2. Electron spin noise spectroscopy

Spin noise optical spectroscopy is based on the Fourier transform of a random time series obtained by recording a Faraday rotation signal as a function of time. The noise of the Faraday rotation arising from the passage of linearly polarized light through a paramagnet shows a resonance in its power spectrum at the precession frequency of the spins of the paramagnet in an applied magnetic field. Discovered by Alexandrov and Zapasskii in 1981 in sodium vapor [54], this effect subsequently found broad application for studying the spin properties of semiconductor structures [55]. In our works [56, 57], a similar shift of electron spin resonance in the Overhauser field was discovered. The experimental design was generally similar to that used to record the Faraday effect induced by a nuclear field (see the previous section). However, in order to record the spectrum of spin noise, the external field was applied perpendicular to the probe light beam. The first observations of the effect were made on microcavity structures. In this case, nuclear spins were pumped either above the stop band of the Bragg mirror, as in the previous section, or resonantly through the photon mode of the cavity. In the latter case, circular or elliptically polarized light of increased power (compared with the probe) was used. Subsequently, similar experiments were performed on bulk n-GaAs layers, with pumping above the bandgap. Figure 4.5 shows a series of spin noise spectra recorded at equal time intervals after pumping the nuclei in a longitudinal field and turning on the transverse magnetic field. One can see how the spectral peak of the electron spin noise shifts as the nuclear spin polarization relaxes. In the case when the initial direction of the Overhauser field is opposite to the external field, field compensation is observed, with the Larmor frequency turning to zero.

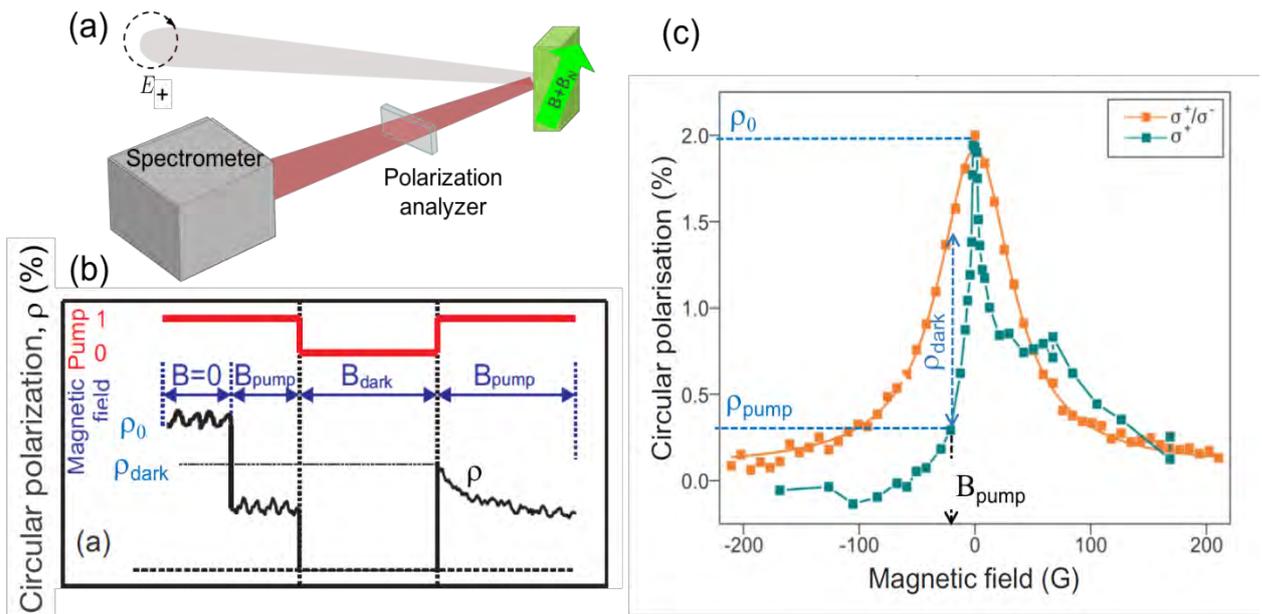


**Figure 4.5.** a) experimental design for measuring the Overhauser field from electron spin noise spectra. b) the evolution of the spectrum of spin noise over time: on the left, the Overhauser field is codirectional to the external field, and on the right, it is oppositely directed. c) resonance in the spectrum of electron spin noise

The advantage of electron spin noise spectroscopy as a method of measuring nuclear magnetization is the ability to accurately quantify the Overhauser field by the resonance frequency. The disadvantages include insensitivity to the sign of the total field acting on the electron spin. In addition, in the case of a lightly doped semiconductor in the dielectric phase, only the magnetization of nuclei near the donors is measured, while the Faraday effect can also provide information about nuclear spins located far from donors and not in contact with electrons.

### 4.3. Photoluminescence with dark intervals

Faraday rotation and spin noise provide real-time detection of nuclear spin polarization, but, as a rule, require the use of structures with microcavities to achieve the necessary sensitivity. In addition, they are not absolutely non-perturbing - with an increase of the power of the probe beam, pumping of nuclear polarization or acceleration of the spin relaxation of nuclei is possible. The measurement of the Overhauser field by the Hanle effect [13] can be implemented on a much wider class of structures. To study the properties of a nuclear spin system in the absence of optical excitation, the dark interval method is used [58]. At the first stage of the experiment, nuclear spins are pumped, then the exciting beam is blocked, the nuclear spin system is exposed to perturbation (for example, by an RF field), and at the last stage, light opens again and photoluminescence is used to determine the Overhauser field at the first moment after the light is turned on.



**Figure 4.6** The experimental technique for the study of relaxation processes in a nuclear spin system by the luminescence method with dark intervals: a) setup scheme; b) experimental timing chart; c) Hanle curves in an oblique field when light is pumped by a variable and constant circular polarization. The dashed arrow indicates a change in the polarization of luminescence as the nuclear magnetization relaxes.

In our works [59–61], this method was adapted for studying spin-lattice relaxation of nuclei. To this end, we varied the duration of the dark interval and measured the nuclear magnetization after it as a function of the length of the dark interval. In Fig.4.6., the scheme of such an experiment is shown. A sample placed in a tilted magnetic field is pumped by circularly polarized light. In the zero field, nuclear spins are not polarized, and the degree of polarization of luminescence is maximum and equal to  $\rho_0$ . After pumping in the field  $B_{pump}$ , the electron spin is exposed to the total (external plus nuclear) field, and the luminescence polarization decreases and takes the value  $\rho_{pump}$  lying on the blue curve (the Hanle effect under nuclear polarization) in Fig. 4.6.c. Then the pumping is turned off, and the nuclear spin temperature relaxes to the lattice temperature. The value of the polarization  $\rho_{dark}$  immediately after the end of the dark interval shows how much the nuclear spin system has relaxed while the pump was turned off. Using the formula for the Hanle effect [1, 13], it is easy to obtain an expression for the nuclear field corresponding to the photoluminescence polarization  $\rho_{dark}$ , which in the case of a small angle of inclination of the external field to the plane of the sample has the form

$$B_N \approx B_{1/2} \sqrt{\frac{\rho_0 - \rho_{dark}}{\rho_{dark}}} - B_{pump} \quad (4.2)$$

where  $B_{1/2}$  is the half-width of the Hanle curve in the absence of nuclear polarization (shown by orange line in Fig.4.6c).

By changing the duration of the dark interval, one can plot the dependence of the nuclear spin temperature on time in the relaxation process, and measure the time of spin-lattice relaxation. Repeating this process at various magnetic fields  $B_{dark}$ , we can study the time dependence of the spin-lattice relaxation rate of nuclei.

**Main results of Chapter 4:**

1. The optical Faraday effect due to the Overhauser field of dynamically polarized nuclear spins in a semiconductor has been experimentally discovered. In addition to the bulk effect theoretically predicted by Artemova and Merkulov, which is due to the splitting of the conduction band, rotation of the plane of polarization as a result of the Pauli blocking of optical transitions to localized electronic states was also observed. The Faraday rotation induced by the Overhauser field formed the basis of one of the methods of non-perturbing control of the dynamics of nuclear magnetization used in this work.
2. A non-perturbing method for recording the temporal dynamics of nuclear magnetization from the spectra of spin noise of resident electrons is proposed and demonstrated.
3. A technique has been developed for studying spin-lattice relaxation of nuclei based on the method of polarized photoluminescence with dark intervals under optical orientation of electron and nuclear spins (that is, with the pump turned off for a variable period of time).

*The studies composing the contents of this chapter are published in the works [52,53,56,57,59-61].*

## Chapter 5. Optical investigation of the nuclear spin thermodynamics of semiconductors in weak magnetic fields

As is known since the 1950s, after the experimental work of Purcell and Pound [62] and the theoretical work of Abragam and Proctor [63], the spins of nuclei in a solid, especially at low (helium) temperatures, form a system well isolated from the crystal lattice, having a huge number of degrees of freedom. Quite often, the behavior of a nuclear spin system can be described on the basis of the laws of thermodynamics, which greatly facilitates the interpretation of experimental results and allows one to predict many bright physical effects. In this case, the nuclear spin system is characterized by its own spin temperature, which can differ by several orders of magnitude from the lattice temperature and take both positive and negative values. For the concept of spin temperature to be applicable, it is necessary that the spin – spin relaxation time  $T_2$  be much shorter than the spin – lattice relaxation time  $T_1$ . However, it is impossible to say in advance whether this condition is sufficient, it depends on the nature of the interactions in which the nuclear spins are involved, and on the hierarchy of relaxation times of various elements of the density matrix of the nuclear spin system. Therefore, the applicability of the thermodynamic description should be established experimentally for the material or structure under study.

The dynamic polarization of nuclear spins in semiconductors through hyperfine interaction with electrons makes it possible to achieve significant degrees of orientation of the spins of lattice nuclei by optical pumping [1]. The decrease in the entropy of the nuclear spin system caused by the orientation of the spins leads, provided that the inter-spin equilibrium is established in the magnetic field, to a decrease in the absolute value of the nuclear spin temperature.

A description of a nuclear spin system using spin temperature is most easily introduced in the case of  $\frac{1}{2}$  spins in a strong magnetic field (strong field here means a field in which the Zeeman energy of the nuclear magnetic moment by far exceeds the energy of its interaction with the moments of other nuclei). The ratio

of the populations of levels with spin projections up (magnetic moment against the field) and down (magnetic moment along the field) can always be represented as

$$N_{\uparrow} / N_{\downarrow} = \exp(-\zeta) \quad (5.1)$$

where  $\zeta = (\hbar\gamma_N B) / (k_B \theta_N)$ , and  $\theta_N$  is the spin temperature, which can be positive as well as negative. In this case, the use of spin temperature is a formal technique that does not lead to any new physical consequences. In the case of nuclei with spin  $I > 1/2$ , one can also introduce the spin temperature, assuming that the population ratio (5.1) is true for each pair of levels with spin projections on the external field differing by 1. This assumption is justified if equilibrium between different pairs of levels is established due to flip-flop transitions. It may turn out to be wrong if the flip-flop transitions are suppressed by the quadrupole interaction, which makes the inter-level splitting different for different pairs of levels. In a recent paper by Chekhovich et al. [64], the relative populations between the spin sublevels of nuclei in single InGaAs quantum dots were measured by the method of optically detected magnetic resonance. This experiment showed that this system in a strong magnetic field was indeed described by the spin temperature approximation, despite a significant quadrupole interaction.

The predictive power of the spin temperature concept is fully manifested in the region of weak magnetic fields, when the Zeeman energy is comparable to or less than the characteristic energy of spin-spin interactions. The main postulate of the theory of spin temperature [63, 65] states that if one selects a region inside the nuclear spin system, that is much larger than the radius of spin-spin interactions, but much smaller than the size of the whole system (Gibbs ensemble), and leaves it to itself for a while, the ratio of probabilities of finding this region in the quantum states  $n$  and  $m$  will still be equal to  $\exp\left(-\frac{\varepsilon_n - \varepsilon_m}{k_B \theta_N}\right)$ , although the energies of these levels,  $\varepsilon_n$  and  $\varepsilon_m$ , are now determined not only by the Zeeman, but also by the spin-spin interactions.

The most important experimental consequence of this postulate is that the magnetization of the NSS in an external magnetic field follows the Curie law: it is proportional to the field and inversely proportional to  $\theta_N$ . Indeed, writing the density matrix of such an ensemble in the high-temperature approximation:

$$\rho_N = \frac{\exp\left[-\beta(\hat{H}_{SS} + \hat{H}_Z)\right]}{\text{Tr}\left\{\exp\left[-\beta(\hat{H}_{SS} + \hat{H}_Z)\right]\right\}} \approx 1 - \beta(\hat{H}_{SS} + \hat{H}_Z) \quad (5.2)$$

where  $\beta = (k_B\theta_N)^{-1}$ ,  $\hat{H}_{SS}$  is the Hamiltonian of spin-spin interactions,  $\hat{H}_Z = -M_B B$  is the Zeeman Hamiltonian,  $\hat{M}_B$  is the operator of the projection of the total magnetic moment of the nuclei on the external field  $B$ , it is easy to find that

$$\langle M_B \rangle = \text{Tr}(\rho_N \hat{M}_B) \approx \beta B \text{Tr}(\hat{M}_B^2) \quad (5.3)$$

Here we took advantage of the fact that the trace of the product of Zeeman and the dipole Hamiltonian is zero, because it changes sign when all spin indices are reversed.

In weak magnetic fields, when the Zeeman energy is much lower than the energy of spin-spin interactions, the spin-spin energy reservoir acts as a thermostat, and  $\theta_N$  is independent of the magnetic field. In this case Eq.(5.3) gives a linear dependence of the magnetization on the field.

For an arbitrary magnetic field, magnetization follows a more complex, but still universal law, specified by a single parameter - a thermodynamic local field  $B_L$ . This law can be obtained from the condition of the energy balance during a change in the magnetic field.

The rate of change of the energy of the spin system under the action of a changing external magnetic field is

$$\frac{dE}{dt} = \frac{\partial \langle H \rangle}{\partial t} = -\langle \vec{M} \rangle \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = -\text{Tr}(\hat{M}_B^2) \beta B \frac{\partial B}{\partial t} \quad (5.4)$$

This equality is true, since the external magnetic field is the only parameter of the Hamiltonian of the spin system that depends on time directly [66]. On the other hand, in accordance with (5.2), the energy of the spin system is

$$E = \langle \hat{H} \rangle = -\beta \text{Tr}(\hat{H}^2) = -\beta (\text{Tr} \hat{H}_Z^2 + \text{Tr} \hat{H}_{SS}^2) = -\beta \text{Tr} M_B^2 (B^2 + B_L^2) \quad (5.5)$$

where  $B_L \equiv \sqrt{(\text{Tr} M_B^2)^{-1} \text{Tr}(\hat{H}_{SS}^2)}$  is, by definition, the thermodynamic local field, characterizing the strength of spin-spin interactions. Simplified, we can understand the local field as an effective magnetic field acting on the spin of the nucleus from all other nuclei. Accordingly, the total time derivative of the energy, considered as a function of the inverse spin temperature  $\beta = (k_B \theta_N)^{-1}$  and the external magnetic field  $B$ , is

$$\begin{aligned} \frac{dE}{dt} &= \frac{d}{dt} \left[ -\beta(t) \text{Tr} M_B^2 (B_L^2 + B^2(t)) \right] = \\ &= -\text{Tr} M_B^2 \left[ (B_L^2 + B^2(t)) \frac{d\beta(t)}{dt} + 2\beta(t) B(t) \frac{dB(t)}{dt} \right] \end{aligned} \quad (5.6)$$

Taking (5.4) and (5.6) equal, we obtain:

$$(B_L^2 + B^2(t)) \frac{d\beta(t)}{dt} + \beta(t) B(t) \frac{dB(t)}{dt} = 0 \quad (5.7)$$

that gives a differential equation for  $\beta$ :

$$\frac{d\beta(t)}{dt} = -\beta(t) \frac{B(t)}{B_L^2 + B^2(t)} \frac{dB(t)}{dt} \quad (5.8)$$

which, in order to account for spin-lattice relaxation, should be complemented by a relaxation term of the form  $-(\beta - \beta_L)/T_1$ , where  $\beta_L = (k_B T)^{-1}$  is the inverse temperature of the lattice, and the spin-lattice relaxation time  $T_1$  depends, in general, on magnetic field (see Chapter 6). In experiments with optical cooling of nuclei in weak magnetic fields, nuclear temperatures usually do not exceed a few millikelvins (otherwise there is no noticeable nuclear magnetization), and the

lattice temperature is several kelvins. Therefore, we can put  $\beta_L$  equal to zero, and the equation for  $\beta$  takes a simple form:

$$\frac{d\beta(t)}{dt} = -\beta(t) \frac{B(t)}{B_L^2 + B^2(t)} \frac{dB(t)}{dt} - \frac{\beta(t)}{T_1(B)} \quad (5.9)$$

permitting an analytic solution. By dividing both sides of Eq.(5.9) by  $\beta$  it is brought to the form

$$\frac{d \ln \beta(t)}{dt} = -\frac{d}{dt} \ln \sqrt{B_L^2 + B^2(t)} - \frac{1}{T_1(B)} \quad (5.10)$$

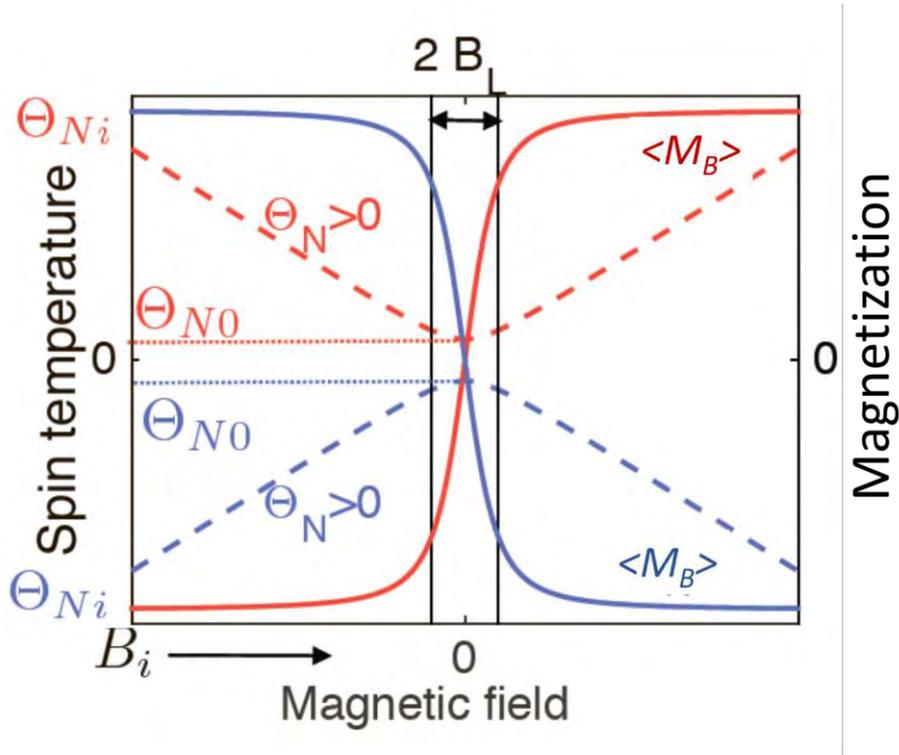
If at the time moment  $t=0$  the magnetic field was equal to  $B_0$ , and the inverse spin temperature – to  $\beta_0$ , solution of Eq. (5.10) yields the following time dependence of  $\beta$ :

$$\frac{\beta(t)}{\beta_0} = \sqrt{\frac{B_L^2 + B_0^2}{B_L^2 + B^2(t)}} \exp\left(-\int_0^t T_1^{-1}(B(t')) dt'\right) \quad (5.10)$$

In the absence of spin-lattice relaxation, Eq.(5.10) gives an expression for the inverse spin temperature under an adiabatic change in the magnetic field, usually obtained from the condition of entropy being constant in the adiabatic process [65]. In view of (5.3), we also obtain the expression for the magnetization:

$$\frac{\langle M_B(t) \rangle}{\langle M_B(0) \rangle} = \frac{B(t)}{B_0} \sqrt{\frac{B_L^2 + B_0^2}{B_L^2 + B^2(t)}} \exp\left(-\int_0^t T_1^{-1}(B(t')) dt'\right) \quad (5.11)$$

Measurement of the dependence of the magnetization of a nuclear spin system on an external magnetic field when it is scanned through a region of small (comparable to local) fields (see Fig. 5.1) makes it possible to directly verify the applicability of the theory of spin temperature to a specific spin system. Despite its apparent simplicity, such an experiment was never carried out before our work [67].

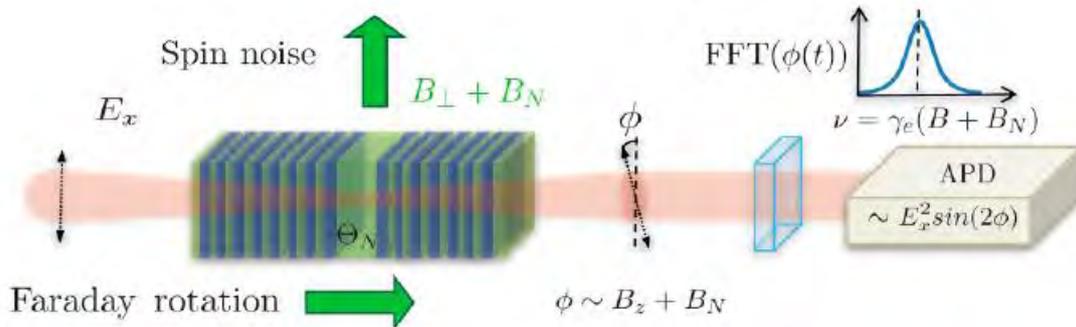


**Figure 5.1.** Change in the nuclear spin temperature  $\theta_N = (k_B \beta)^{-1}$  (dashed lines) and magnetization  $\langle M_B \rangle$  (solid lines) during adiabatic scanning of the magnetic field from the initial value  $B_i$  through zero, in accordance with Eqs. (5.10) and (5.11), neglecting spin-lattice relaxation ( $T_1 = \infty$ ).

We used non-perturbative optical methods for measuring nuclear spin polarization, described in Chapter 4, namely non-resonant Faraday rotation and spin-noise spectroscopy. The samples used were  $3\lambda/2$  microcavities with active GaAs layers doped with silicon to electron concentrations  $n_D = 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  (sample A) and  $n_D = 4 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  (sample B), as well as a  $20 \mu\text{m}$  GaAs epitaxial layer with  $n_D = 4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  on a GaAs substrate (sample C).

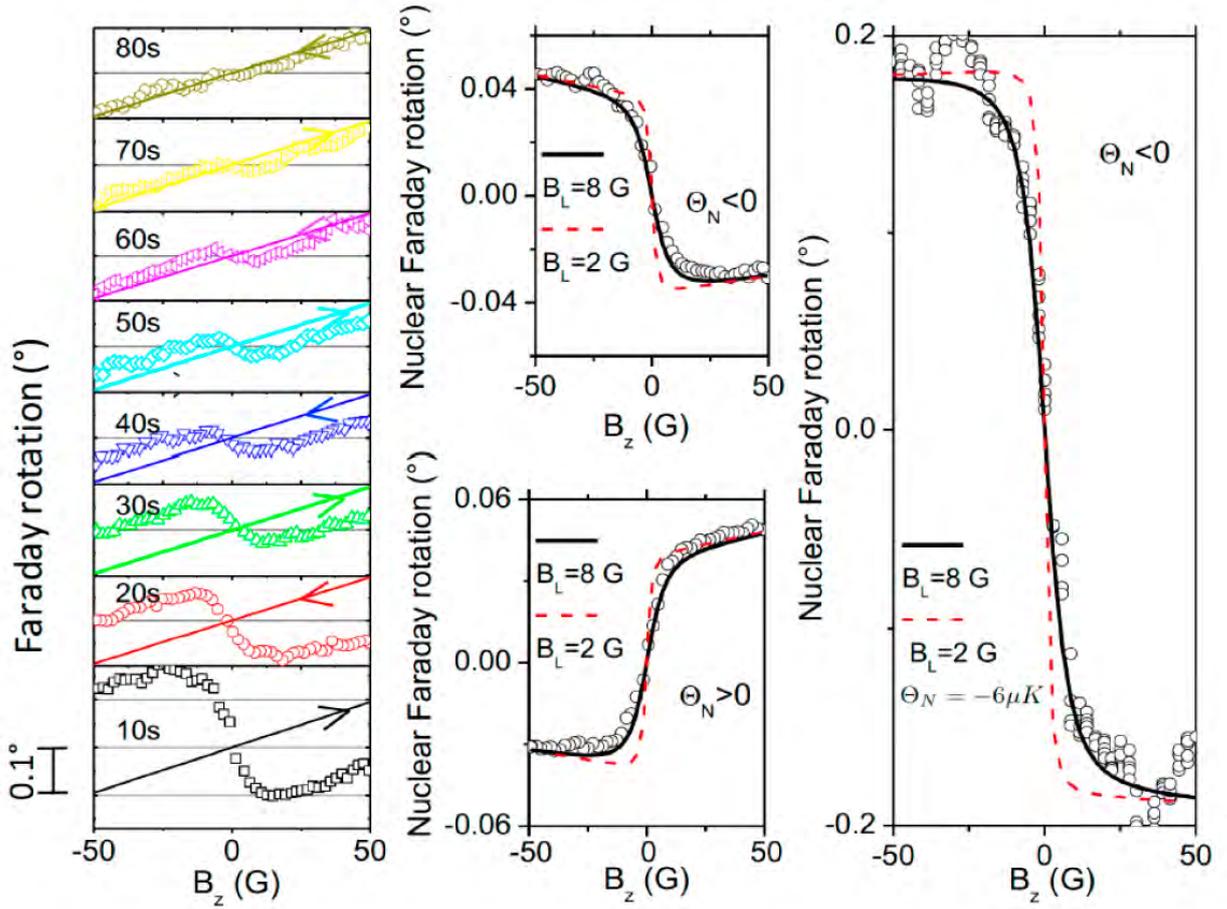
The experimental design is shown in Fig.5.2. Samples were placed in a cryostat that maintained a temperature of 5K. Nuclear spins were pumped by circularly polarized light with a photon energy exceeding the GaAs band gap in a longitudinal magnetic field of 180 G. The probing was performed by linearly polarized light with a quantum energy corresponding to the photon mode of the

cavity and 20 meV smaller than the GaAs band gap. At the measurement stage (see Chapter 4), a linear sweep of the magnetic field was carried out, which was parallel to the probe beam and perpendicular to the plane of the structure in the case of Faraday rotation, and parallel to the plane of the structure in the case of spin noise, in the range from +50 to -50 G.



**Figure 5.2.** Scheme of an experiment on adiabatic magnetization reversal of a nuclear spin system. Above: electron spin noise spectroscopy. Below: non-resonant Faraday rotation.

The results of these experiments are presented in Figures 5.3 and 5.4.

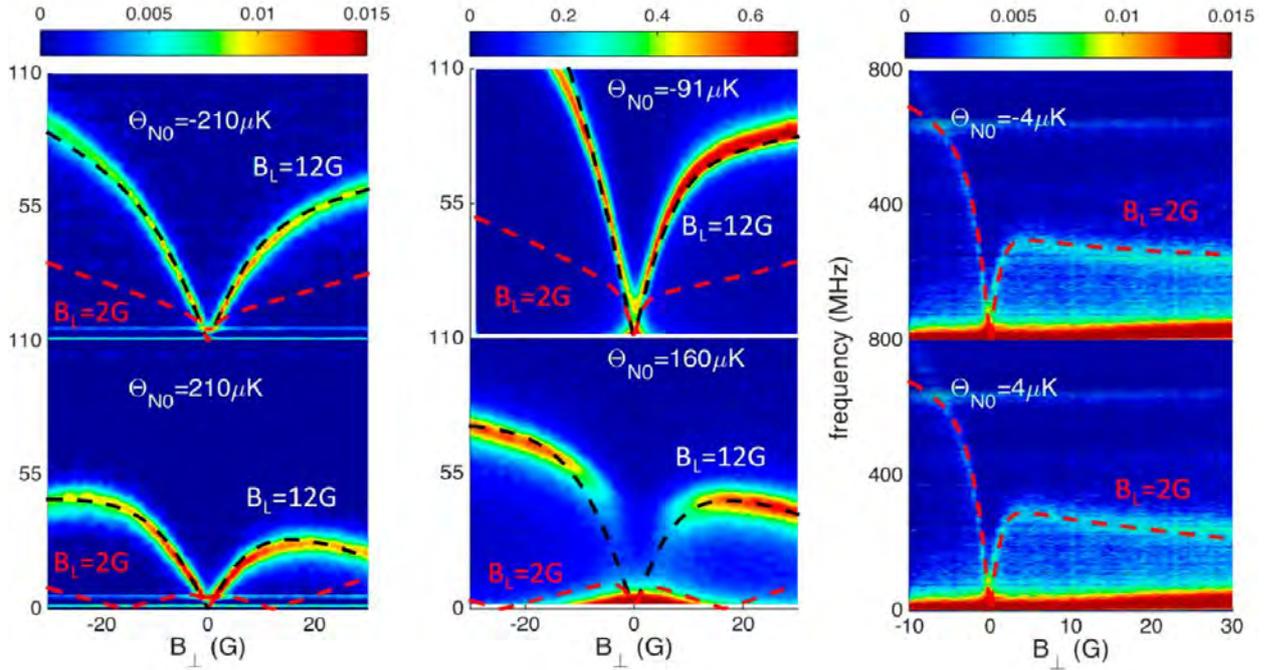


**Figure 5.3.** *Left:* dependence of the Faraday rotation angle on the magnetic field when it is repeatedly scanned through zero. Straight lines - Faraday rotation, induced directly by an external field. *In the middle:* the contribution of nuclear magnetization to the Faraday rotation on sample A at a positive (below) and negative (above) spin temperature of the nuclei. *Right:* same on sample B.

As can be seen from Fig.5.3 (left panel), the shape of the magnetization reversal curve, measured by the Faraday rotation, is preserved during repeated scanning of the magnetic field through zero. The amplitude of nuclear magnetization decreases with time due to spin-lattice relaxation. The central and right panels of Fig.5.3 show magnetization reversal curves, measured in more detail at the first passage of the magnetic field through zero. The experimental dependences are perfectly described by Eq. (5.11) with a single fitting parameter,  $B_L$  (the dependence of the spin-lattice relaxation time  $T_1$  on the magnetic field was measured separately, see

Chapter 6). However, the value of the local field  $B_L \approx 8 \text{ G}$  obtained from fitting is very different from the theoretical value for gallium arsenide,  $B_L \approx 1.5 \text{ G}$  [68]. For comparison, the theoretical curves for  $B_L \approx 2 \text{ G}$  are plotted; the difference is clearly noticeable and by far exceeds the accuracy of the experiment.

The results of measuring the magnetization reversal curves by the spin noise method are shown in Fig.5.4.



**Figure 5.4.** Evolution of the spectra of electron spin noise (the frequency is plotted along the vertical axis, the spectral density of the noise power is shown in color) when scanning the magnetic field for samples A (left), B (in the middle) and C (right). - nuclear spin temperature at  $B = 0$ .

In this case, the position of the resonance in the spectrum of electron spin noise,  $f_0(t) = (\gamma_e / 2\pi) |B + B_N(t)|$ , where  $B_N(t)$  is the Overhauser field, is also well described by Eq.(5.11). Due to the longer signal accumulation time, the magnetic field scan time was 10 times longer than in the Faraday rotation experiments. Therefore, the effect of spin-lattice relaxation on the measured dependences is very noticeable. The value of the local field in samples A and B (structures with a microresonator) obtained from the best fit of the curves by Eq.(5.11) is 12 G. The difference between this value and that measured by the Faraday rotation method lies within the experimental error (determined mainly by the need to make corrections for spin-lattice relaxation). The local field in sample C (bulk epitaxial layer) turns out to be 2G, which, within the error limits, does not differ from the theoretical value of 1.5 G, determined by the dipole-dipole magnetic interaction of nuclear spins.

This result suggests that the large value of the thermodynamic local field  $B_L \equiv \sqrt{(\text{Tr } M_B^2)^{-1} \text{Tr}(\hat{H}_{SS}^2)}$  obtained on structures with microcavities is the result of quadrupole splitting of nuclear spin levels as a result of deformation of the active layer of gallium arsenide embedded in a multilayer heterostructure. In this case,  $\text{Tr}(\hat{H}_{SS}^2) = \text{Tr}(\hat{H}_{dd}^2) + \text{Tr}(\hat{H}_q^2)$ , where  $\hat{H}_{dd}^2$  and  $\hat{H}_q^2$  are the Hamiltonians of the dipole – dipole and quadrupole interactions, respectively (see Chapter 1). Using the known parameters of the quadrupole interaction in gallium arsenide [69], it can be estimated that deformation of only 0.01% leads to an increase in the local thermodynamic field to 10 G. [70].

The heat capacity of a nuclear spin system is usually defined [65] as

$$C_N \equiv -\frac{\partial E}{\partial \beta} = \text{Tr } M_B^2 \cdot (B^2 + B_L^2) \equiv C_Z + C_{SS} \quad (5.12)$$

where  $C_Z$  and  $C_{SS}$  are the Zeeman and spin-spin heat capacity components, respectively. Our results show that the spin-spin heat capacity, proportional to  $B_L^2$ , in structures with microcavities increased by about 50 times. Accounting for the quadrupole interaction explains this fact, but raises the question of how the equilibrium is established between the Zeeman and spin-spin energy reservoirs in such structures. Indeed, the quadrupole interaction only splits the energy levels of each of the nuclear spins, but does not connect the spins of different nuclei to each other. Therefore, equilibrium in the nuclear spin system should be established anyway due to flip-flop transitions induced by the dipole-dipole interaction. Such transitions are suppressed when the external magnetic field is greater than the characteristic mixing field  $B_{mix}$ , several times higher than the real local fields due to the dipole – dipole interaction [71].

Figure 5.5 shows the demagnetization curve taking into account the establishment of equilibrium in the mixing field. The inverse spin temperature, established after mixing, can be found from the energy balance condition. When a

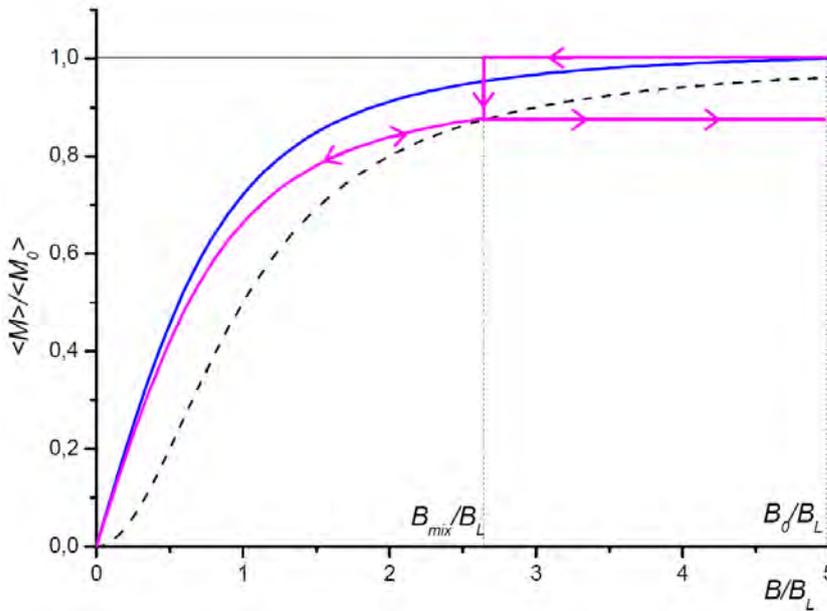
dynamically polarized nuclear spin system is demagnetized from a strong magnetic field, the spin-spin reservoir has zero energy, and the Zeeman energy is equal to  $E_Z(B_{mix}) = -M_0 B_{mix}$ . After establishing equilibrium between the reservoirs, the total energy of the spin system is equal to  $E(B_{mix}) = -\beta_{mix} \text{Tr} M_B^2 \cdot (B_{mix}^2 + B_L^2)$ . Equating these two energies, we obtain the inverse spin temperature after mixing

$$\beta_{mix} = \frac{M_0 B_{mix}}{\text{Tr} M_B^2 \cdot (B_{mix}^2 + B_L^2)} \quad (5.13)$$

and the corresponding magnetization

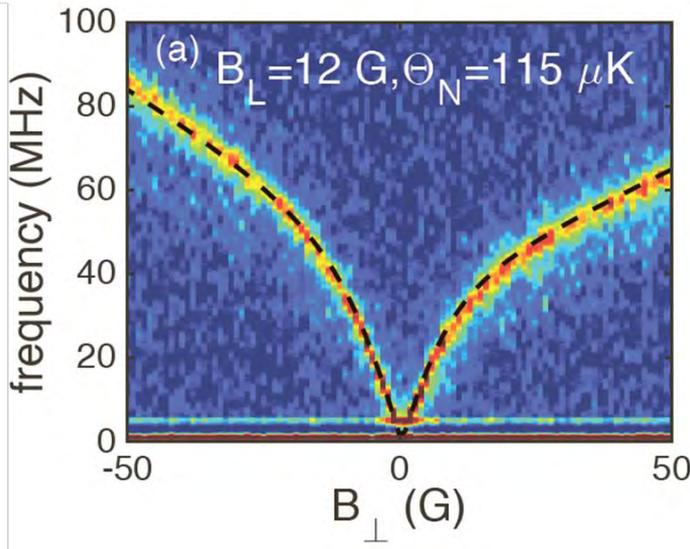
$$M_{mix} = M_0 \frac{B_{mix}^2}{B_{mix}^2 + B_L^2} \quad (5.14)$$

Dependence of  $M_{mix}$  on  $B_{mix}$  is shown in Fig.5.5 by the dashed curve. The solid blue line is the adiabatic demagnetization curve for the case  $B_0 < B_{mix}$ . In the case  $B_0 > B_{mix}$ , with a decrease of the magnetic field, the magnetization does not change down to  $B = B_{mix}$ , then abruptly decreases to  $M_{mix}$ , and then follows another adiabatic curve. If then the field starts to increase, the magnetization will return by the violet curve to  $M_{mix}$  and, with a further increase in the field, will remain constant.



**Figure 5.5.** The change in magnetization when passing through the mixing field (purple curve) and in the case  $B_{mix} > B_0$  (blue curve). Dashed line: dependence of  $M_{mix}$  on  $B_{mix}$ .

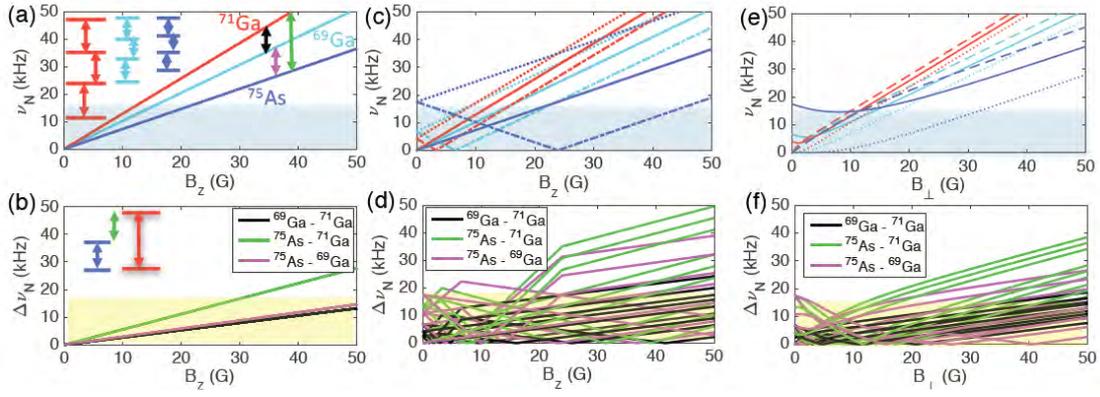
For gallium arsenide, the mixing field should be of the order of 10 G. In bulk GaAs, where the thermodynamic local field is due to the dipole – dipole interaction, the spin – spin heat capacity in the field of 10 G is small compared to the Zeeman field. Therefore, the energy transferred during mixing is also small, and the magnetization reversal curve will not differ from the adiabatic one given by Eq.(5.11). But in a structure with a microcavity, this is not so. Therefore, during demagnetization from  $B_0 = 50\text{G}$ , one could expect a magnetization jump similar to the one shown by the violet curve in Fig.5.5, and when the field increased after demagnetization, the magnetization should not have reached its initial level. As can be seen from Fig.5.3 (right panel), this is not observed in the experiment. To verify, a special experiment was performed in which the nuclear spin system was kept in the dark for 90 seconds after cooling in order to complete the transition processes associated with spin diffusion and relaxation near the donor centers (see Chapter 6). Subsequent measurement of the magnetization reversal curve by the spin noise method made it possible to measure the dependence with an accuracy of 2% (see Fig. 5.6). In this case, the features arising during the passage of the mixing field should have been clearly visible, but they were not observed.



**Figure 5.6.** Adiabatic magnetization reversal curve measured on sample A with preliminary exposure in the dark. The dashed line is fitting according to Eq. (5.11).

Thus, the mixing field in the studied structures with microresonators exceeded 50 G. The Zeeman splitting of nuclear spin levels corresponding to this field is 30 times larger than their width  $\sim h/T_2$  due to the dipole – dipole interaction.

We assume that this surprising fact is explained by the complex energy spectrum of the nuclear spin system of gallium arsenide. The GaAs crystal lattice is formed by three isotopes ( $^{75}\text{As}$ ,  $^{69}\text{Ga}$ ,  $^{71}\text{Ga}$ ) with different magnetic and quadrupole moments. The simultaneous application of deformation and a magnetic field forms a forest of levels between which transitions induced by dipole – dipole interactions are possible, as shown in Fig.5.7.



**Figure 5.7.** Transition frequencies between nuclear spin levels in gallium arsenide as a function of magnetic field. (a, c, e) - within the same nucleus, (b, d, f) - between different isotopes: (a, b) - in the absence of deformation, (c, d) the axis of deformation along the magnetic field, (e, f) Is the axis of deformation across the magnetic field. The colored bars below show the range of transitions allowed by energy conservation ( $\Delta\nu \leq 5/T_2$ ).

Thus, the thermal equilibrium inside the GaAs nuclear spin system is established in magnetic fields  $B_{mix} > 5B_L$  even when, as a result of quadrupole splitting of the nuclear spin levels, the thermodynamic local field  $B_L$  becomes 6-8 times larger than the true local magnetic fields acting on the nuclear spin from the neighboring nuclear magnetic moments. This makes it possible to study the cooling and thermal relaxation of the nuclear spin system in structures with microcavities, which allows one to efficiently use non-perturbing methods for measuring nuclear magnetization, based on laser polarimetry.

## Main results of Chapter 5

1. The predictions of the theory of spin temperature regarding the behavior of the magnetization of a cooled nuclear spin system when scanning a magnetic field from an initial value exceeding the thermodynamic local field, with the field passing through zero, are experimentally verified and confirmed.
2. It was found that in heterostructures with an active layer of gallium arsenide in a microcavity, the thermodynamic local field of the nuclear spin system of the active layer is increased by 6-8 times in comparison with bulk gallium arsenide. This is

presumably related to the quadrupole splitting of nuclear spin levels as a result of deformation of the GaAs layer in the heterostructure.

3. It was experimentally shown that the mixing of the Zeeman and spin-spin energy reservoirs of the nuclear spin system of the gallium arsenide layer in a microcavity occurs in external magnetic fields exceeding the thermodynamic local field by at least 5 times. This allows one to use such structures for studying thermodynamics and spin-lattice relaxation of a nuclear spin system by non-perturbing optical methods.

*The studies that make up the contents of this chapter are published in Ref.[67].*

## **Chapter 6. Spin-lattice relaxation of the nuclear spin system in weak magnetic fields**

As shown in Chapter 5, the dependence of nuclear spin polarization on the magnetic field is well described by the theory of spin temperature not only in bulk GaAs, but also in GaAs layers embedded in heterostructures, including structures with microcavities. This makes it possible to use a wide range of structures based on gallium arsenide as model ones for studying the spin-lattice relaxation of nuclei in semiconductors, which is actually a relaxation of the spin temperature to the temperature of the crystal lattice, i.e. warm-up of the nuclear spin system. The use of microcavities makes it possible to apply, *inter alia*, non-perturbing optical methods for measuring nuclear magnetization based on laser polarimetry, described in Chapter 4, which allow tracking the dynamics of a nuclear spin system in real time. This chapter presents the results of experimental studies of the warm-up of the nuclear spin system in n-type gallium arsenide (in a wide range of donor concentrations from the dielectric to the metallic phase [59 - 61, 72]) and p-type gallium arsenide [73], and a theoretical interpretation of the results of these experiments.

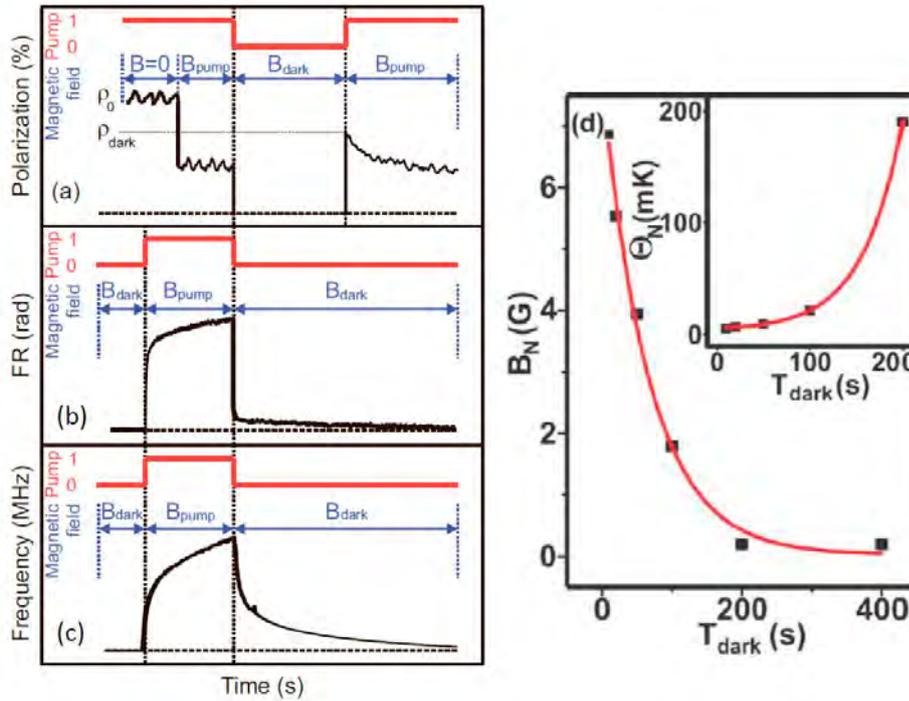
### **6.1. Experimental studies of the spin-lattice relaxation of nuclei in GaAs**

A set of investigated structures is presented in Table 6.1. It includes both bulk (n- and p-type GaAs epitaxial GaAs layers) and microstructures (layers 0.37  $\mu\text{m}$  thick in microcavities and 1  $\mu\text{m}$  thick in a heterostructure with AlGaAs barriers). A structure with a wide (19.7 nm) undoped quantum well was also investigated.

Образец	A	B	C	D	E	F	G	H	I
тип	MC	MC	Bulk	Bulk	MC	DHS	Bulk	Bulk	QW
d, $\mu\text{m}$	0.37	0.37	200	20	0.37	1	20	20	0.02
n, $10^{15}\text{cm}^{-3}$	40	20	6	4	2	90	-----	-----	-----
p, $10^{15}\text{cm}^{-3}$	-----	-----	-----	-----	-----	-----	26	60	-----
метод	SN	FR	PL	SN, PL	FR, SN	PL	PL	PL	PL

**Table 6.1.** Parameters of the samples. Structure type: MC — microcavity, bulk — bulk epitaxial layer, DHS — double heterostructure, QW — quantum well. d is the thickness of the layer. N is the concentration of resident electrons. p is the concentration of resident holes. Research method: SN - spin noise, FR - Faraday rotation, PL - photoluminescence with dark intervals.

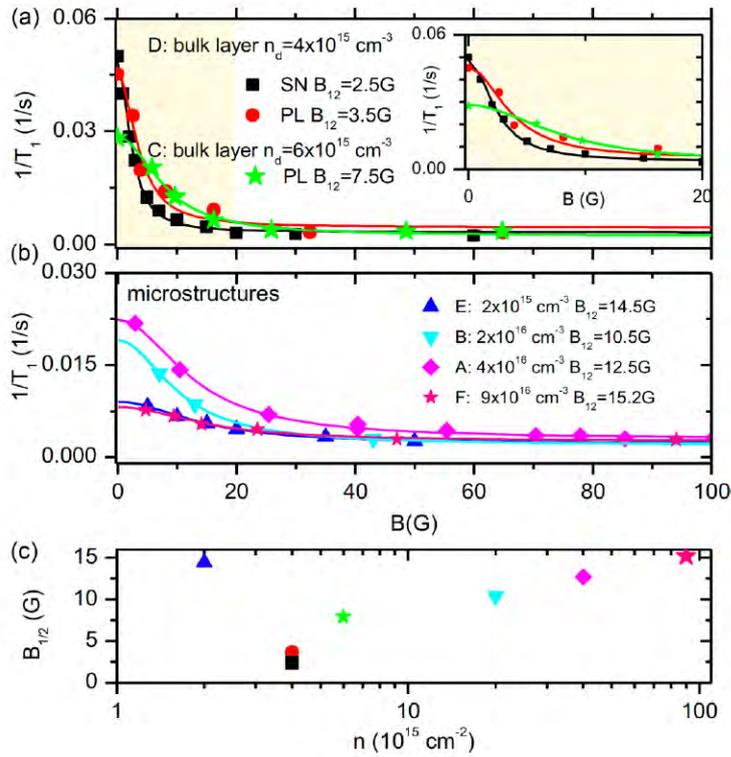
To study the spin-lattice relaxation of nuclei in the absence of optical excitation, at the first stage of the experiment, optical pumping was performed in a magnetic field longitudinal with respect to the exciting light, and then, after switching off the pump, the time dependence of the nuclear spin temperature was measured using one of the methods described in chapter 4 (see Fig. 6.1).



**Figure 6.1.** Time diagrams of experiments on studying the nuclear spin-lattice relaxation by (a) photoluminescence methods with dark intervals, (b) Faraday rotation and (c) spin noise. d) an example of the measured time dependence of the nuclear field and spin temperature (inset). In case (a), the nuclear field is measured in the field  $B_{pump}$  as a function of the duration of the previous dark interval (when the field is equal to  $B_{dark}$ ), in cases (b) and (c) - directly in the field  $B_{dark}$ .

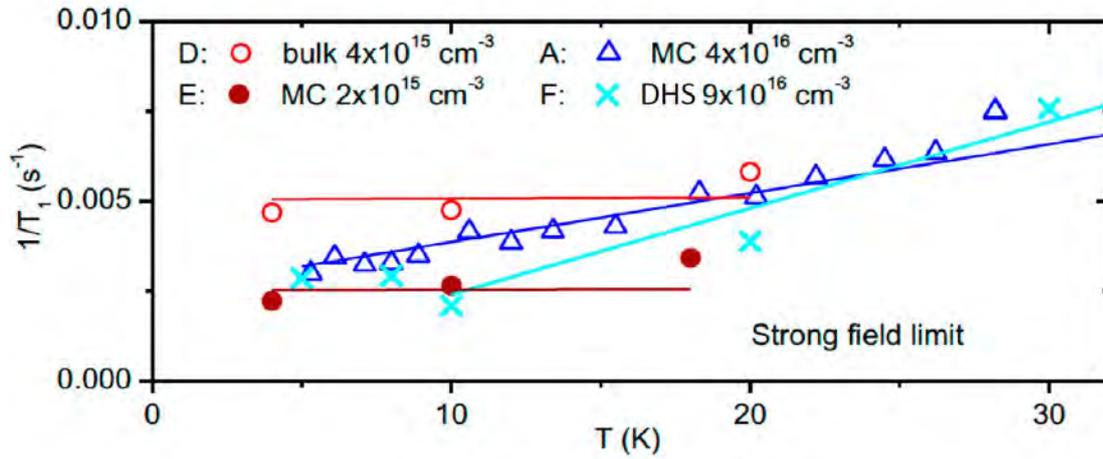
Measurements were performed at different magnetic fields  $B_{dark}$  and temperatures.

The results of these experiments are presented in figures 6.2-6.5. Figure 6.2 shows the dependences of the relaxation rate  $1/T_1$  on the magnetic field in the range from 0 to 100 G at a temperature of 4-5 K for various n-type structures. A relaxation is observed to be suppressed in the characteristic fields  $B_{1/2} < 20$  G by an order of magnitude, compared to the zero field, and to approach a constant level corresponding to  $T_1 \approx 200$  s in stronger fields. The characteristic relaxation suppression fields in microstructures are several times larger than in bulk layers.

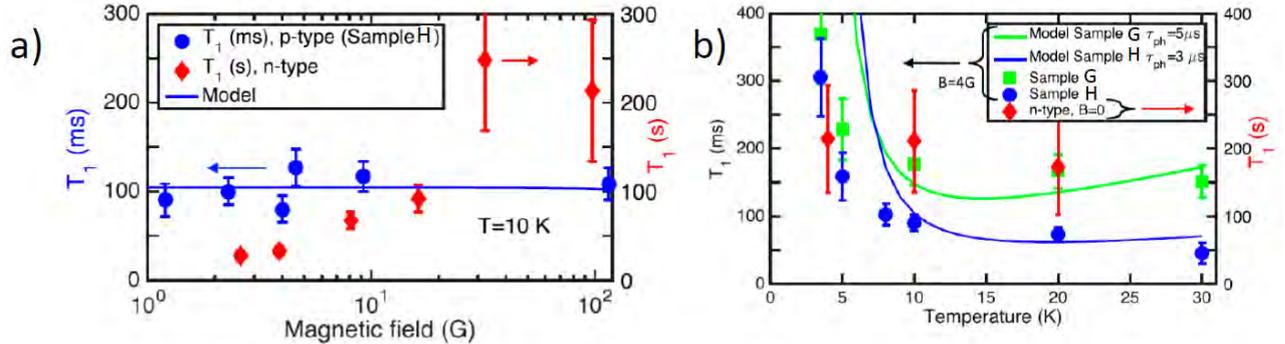


**Figure 6.2.** Dependence of  $1/T_1$  on the magnetic field for structures with n-type GaAs layers at the temperature of 4-5K. a) bulk layers; in the inset - in more detail for a range of 0-20G. b) microstructures (microcavities and a double heterostructure). c) the half-width of the dependencies (fitting by Lorentzian on a constant background) as a function of donor concentration.

Figure 6.3 shows the dependences of the spin-lattice relaxation rate on temperature in magnetic fields in the range 150-1000 G, when the relaxation is no longer dependent on the field. Here we can see the difference between dielectric and metallic samples: in dielectric samples temperature dependence is not observed, while in metallic ones with increasing temperature the relaxation approaches the Korringa law (relaxation rate is proportional to temperature).

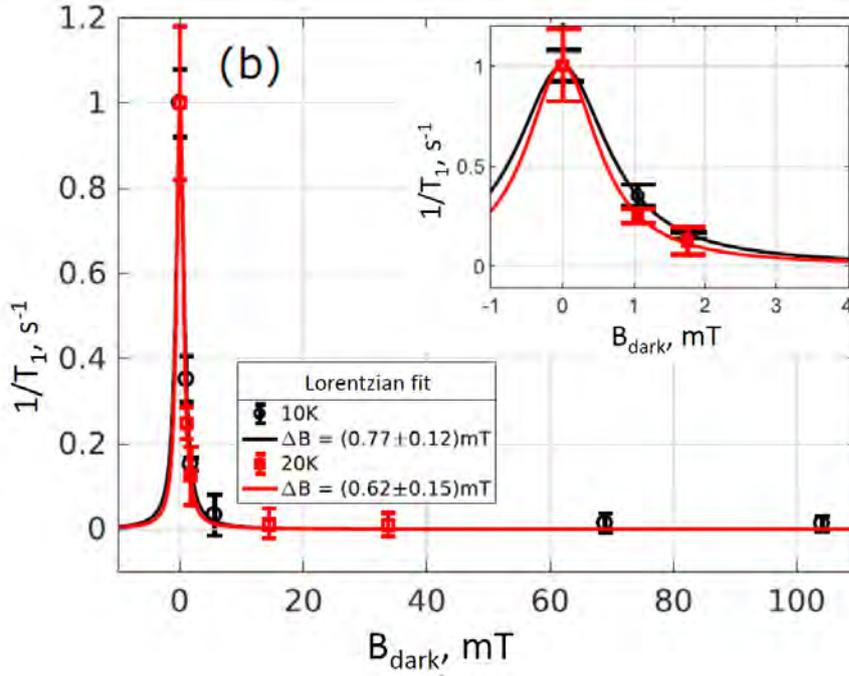


**Figure 6.3.** Temperature dependence of the relaxation rate in fields 150-1000G for samples A, D, E, F. Figure 6.4 shows the temperature and magnetic field dependences of the spin-lattice relaxation time in p-type samples, in comparison with similar dependences in n-type GaAs. The main difference is 3 orders of magnitude shorter relaxation time. In addition, there is no dependence on the magnetic field in the range 0–100 G, and, conversely, a rather sharp temperature dependence is observed below 10 K, which is absent in n-type GaAs.



**Figure 6.4.**  $T_1$  as a function of magnetic field (a) and temperature (b) in p-type GaAs (left axis, milliseconds) and n-type GaAs (right axis, seconds).

Finally, Fig.6.5 shows results for the undoped quantum well.



**Figure 6.5.** Dependence of the nuclear spin-lattice relaxation rate on the magnetic field for sample I (undoped quantum well 19.7 nm wide).

Here, the dependences of the relaxation rate on temperature and magnetic field are qualitatively similar to those for dielectric n-GaAs, but the change of  $T_1$  with increasing magnetic field in the range of weak fields is stronger:  $T_1$  increases by two orders of magnitude from 1 second in a zero field to 200 seconds in a field of 1000 G. with a half-width of magnetic field dependence of 6-7 G.

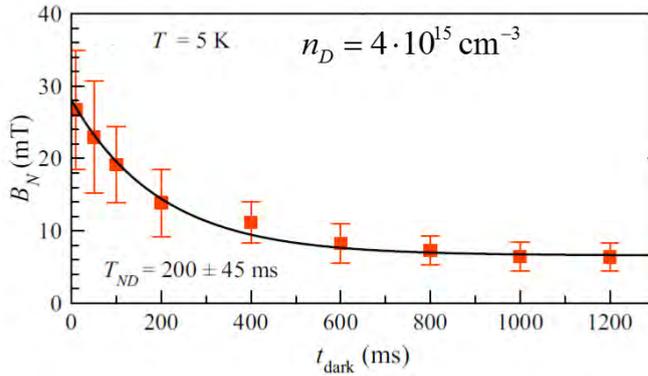
## 6.2. Main mechanisms of nuclear spin-lattice relaxation in dielectric n-GaAs

The features of spin-lattice relaxation in various types of semiconductor structures described above are explained by the specifics of the dynamic polarization of nuclei upon optical pumping, as well as by the contribution of several relaxation mechanisms. As shown in [1], the dynamic polarization of nuclear spins occurs with the greatest efficiency through hyperfine interaction with localized electrons. In the dielectric phase of bulk semiconductors, this is practically the only mechanism of dynamic polarization, since the polarization efficiency of nuclear spins by free photoexcited electrons is inferior to it by several orders of magnitude. Nuclei distant from donors are polarized by spin diffusion [49, 50], characterized by a diffusion coefficient  $D_N \approx 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$  [32]. This process, which takes hundreds of seconds, was studied in relation to optical

orientation in semiconductors by Paget [32] and Kalevich et al. [74]. In our experiments, it manifested itself as a slow increase of the Faraday rotation signal in Fig. 6.1 (b) and as a shift of the central frequency of the electron resonance in the spin noise spectrum in Fig. 6.1 (c). After switching off the pump, the relaxation of the nuclear magnetization proceeds in the reverse order, due to spin diffusion to donors playing the role of “killer centers”. As shown by Khutsishvili [49] and De Gennes [50], the relaxation rate determined by such a process is

$$T_D^{-1} \approx 4\pi D_N n_D a_B \quad (6.1)$$

which, at  $n_D = 4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ , gives  $T_D \approx 200 \text{ s}$ , in accord to experimentally measured times for magnetic fields above 50G. The diffusion stage is preceded by a rapid relaxation of the nuclear magnetization within the Bohr radius of the donor. This process can also be recorded experimentally if the pump pulse duration is reduced (Fig. 6.1 (a)) and the dark interval duration is changed in the subsecond time range [75]. The result of such an experiment is shown in Fig. 6.6.



**Figure 6.6.** The initial stage of spin-lattice relaxation in dielectric n-GaAs: relaxation of nuclear spins in contact with an electron localized at the donor [75].

As can be seen from Fig.6.6, the nuclear magnetization decreases with a characteristic time of 200 milliseconds and reaches a quasi-constant level, reflecting the polarization of bulk nuclei. With prolonged pumping, the polarization of bulk nuclei increases manifold due to spin diffusion and determines the long-term (hundreds of seconds) dynamics of the decay of the nuclear field, shown in Fig. 6.1 (d). It is easy to verify that the measured time  $T_{ND} \approx 200 \text{ ms}$  actually corresponds to the hyperfine relaxation of

nuclei in contact with a localized electron. The relaxation rate of the nuclear spin under the influence of a fluctuating Knight field  $B_e$  is equal to [1]

$$T_{1e}^{-1} \approx \langle \gamma_N^2 \rangle \langle B_e^2 \rangle \tau_c \quad (6.2)$$

Substituting here the Knight field averaged over the hydrogen-like wave function of the donor-bound electron  $\sim 20$  G, we obtain an estimate of the electron spin correlation time  $\tau_c \approx 400$  ps, which coincides with that determined from the study of electron spin relaxation for  $n_D = 4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  (see Chapter 3).

Thus, for magnetic fields  $B > 50$  G, our results confirm the model of hyperfine relaxation at donors, limited by spin diffusion, as proposed by Paget.

What is even more surprising is the fact that neither the relaxation (warm-up) of the nuclear spin system in fields of the order of the local field in n-GaAs, nor the spin-lattice relaxation of nuclei in p-GaAs in general, are described by this model under any reasonable assumptions.

Indeed, out of the parameters included in the Khutsishvili-De Gennes formula (6.1), only the diffusion coefficient can depend on the magnetic field, but this dependence is not so strong as to explain an increase in the relaxation rate by an order of magnitude, and even more so by two orders of magnitude, as in Fig.6.5. The subsecond time scale of spin-lattice relaxation in p-GaAs does not fit into this picture at all, since there are no resident electrons in the p-type material.

As will be shown below, these contradictions are resolved by taking into account the contribution of the quadrupole interaction to the spin-lattice relaxation of nuclei.

### 6.2.1. Quadrupole warm-up of the nuclear spin system by fluctuating electric fields

In magnetic fields lower than the mixing field ( $B_{mix} \sim 50$  G, see Chapter 4), the Zeeman reservoir is in equilibrium with the spin-spin one and, as one of the consequences, the magnetization of the nuclear spin system is completely determined by its spin temperature and external field. In this regime, the rate of spin-lattice relaxation is actually the warm-up rate of the nuclear spin system. If the rate of energy

input from fluctuating electric fields is equal to  $\mathfrak{T}_Q$ , the warm-up rate is determined by the formula

$$\frac{1}{T_Q} = \frac{\mathfrak{T}_Q}{C_N \beta} \quad (6.3)$$

where  $C_N = \text{Tr} M_B^2 \cdot (B^2 + B_L^2) = \langle \gamma_N^2 \rangle \frac{I(I+1)}{3} (B^2 + B_L^2)$  is the heat capacity of the nuclear spin system (see Chapter 5).

Let us consider a small volume  $V$ , inside which a fluctuating electric field  $E_f$  can be considered spatially uniform. As follows from Eq.(1.13) of Chapter 1, in GaAs and other cubic piezoelectric crystals the total Hamiltonian of the quadrupole interaction of all nuclei inside this volume can be written as

$$\hat{H}_Q = -V (\vec{E}_f \cdot \vec{P}_Q) \quad (6.4)$$

where  $\vec{P}_Q$  is the dielectric polarization related to the quadrupole moment. The components of  $\vec{P}_Q$  are determined as

$$P_Q^i = \frac{1}{V} \sum_{j,k} \beta_Q \nu_{jk,i} \sum_n (Q_{jk})_n \quad (6.5)$$

(see Eqs.1.10 -1.14 in Chapter 1). Here  $n$  numerates nuclei within the volume  $V$ .

In the linear response approximation, the spectral density of absorbed power at the frequency  $\omega$  equals

$$\mathfrak{T}_Q(\omega) = \frac{\omega}{2} \alpha''(\omega) E_f^2(\omega) \quad (6.7)$$

where  $\alpha''(\omega)$  is the imaginary part of generalized susceptibility. According to the fluctuation-dissipation theorem [66],  $\alpha''(\omega)$  can be expressed via the spectral power density of fluctuations  $\vec{P}_Q$ :

$$\alpha''(\omega) = V \frac{\omega \beta}{2} \langle \delta P_Q^2(\omega) \rangle \quad (6.8)$$

In order to calculate the total energy influx into the nuclear spin system,

$\mathfrak{T}_Q = \int_{-\infty}^{\infty} \mathfrak{T}_Q(\omega) d\omega$ , it is necessary to know the fluctuation spectra of both the electric field

and the quadrupole polarization. In the dark, electric fields fluctuate due to charge fluctuations as a result of thermal activation of electrons from donors to the conduction band and as a result of hopping from filled to empty donors. Let us consider the simplest case of charge fluctuations characterized by a single correlation time  $\tau_c^e$ , which has the meaning of the average time of filling an empty donor by capturing a free electron from the conduction band or by hopping from a neighboring donor. In this case, the temporal correlation function of the electric field can be written as

$$\langle E_f(0)E_f(t) \rangle = LE_a^2 \exp(-t/\tau_c^e) \quad (6.9)$$

where  $E_a$  is the electric field at a distance of the Bohr radius from the charged donor, and the dimensionless coefficient  $L$  takes into account the averaging of the electric fields of randomly located charged centers. For the impurity band of an n-type bulk semiconductor  $L \approx 2.5a_b^3 n_D^+$ . Having performed the Fourier transform of the correlation function (Eq.6.9), we obtain the power spectrum of fluctuations of the electric field:

$$\langle E_f^2(\omega) \rangle = LE_a^2 \frac{2\tau_c^e}{1+(\omega\tau_c^e)^2} \quad (6.10)$$

Using Eqs. (6.7), (6.8) и (6.10) we obtain the following expression for the total absorbed power:

$$\mathfrak{S}_Q = \frac{V\beta}{2\tau_c^e} LE_a^2 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{(\omega\tau_c^e)^2}{1+(\omega\tau_c^e)^2} \langle \delta P_Q^2(\omega) \rangle d\omega \quad (6.11)$$

Though the precise form of the dependence  $\langle \delta P_Q^2(\omega) \rangle$  is unknown, it is concentrated mainly in the frequency range  $|\omega| < \gamma_N \sqrt{B_L^2 + B^2}$ . Therefore, in the case when  $\tau_c^e \gg T_2 \sim 1/(\gamma_N B_L)$ , one can replace the fraction under the integral by unity, which yields

$$\mathfrak{S}_Q = \frac{\pi V\beta}{\tau_c^e} LE_a^2 \langle \delta P_Q^2 \rangle \quad (6.12)$$

where  $\langle \delta P_Q^2 \rangle$  - the total mean squared fluctuation of the quadrupole polarization, which can be found by taking the trace from the right-hand side of Eq. (6.5). Substituting Eq.(6.12) into Eq.(6.3), we obtain the final expression for the warm-up rate of the

nuclear spin system by slow (as compared to  $T_2$ ) fluctuations of the electric charge in the impurity band::

$$1/T_Q = \frac{\pi L (eQ\beta_Q E_a)^2}{5(\hbar\gamma_N)^2 (B^2 + B_L^2) \tau_c^c} \frac{4I(I+1)-3}{[4I(2I-1)]^2} \quad (6.13)$$

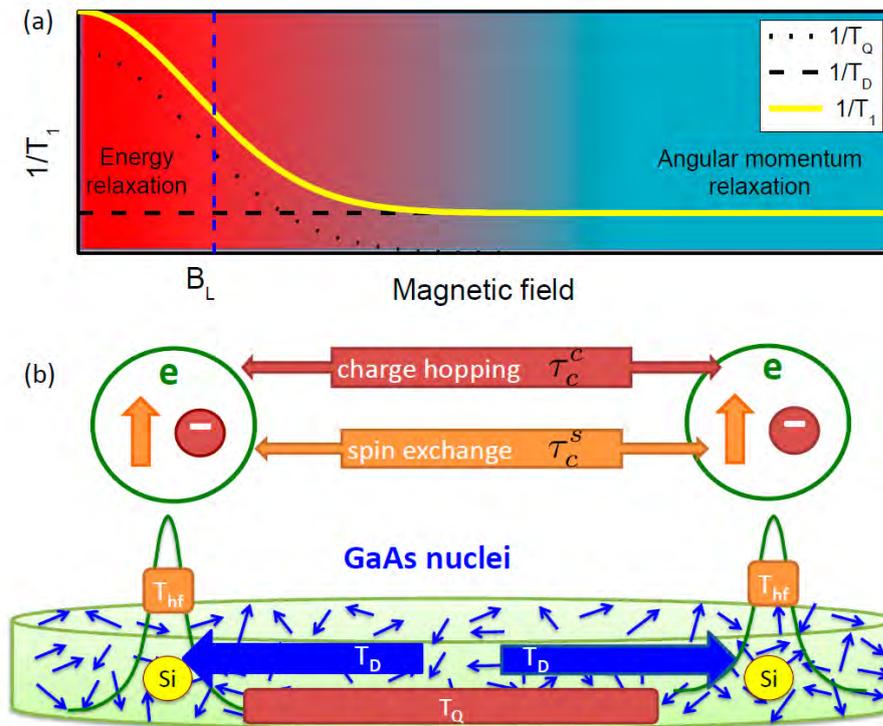
As can be seen from Eq.(6.13), the quadrupole warm-up rate is maximum at zero external magnetic field and decreases quadratically in the field at  $B^2 \gg B_L^2$ . Its value in the zero field is determined by the coefficient  $L$ , which reflects the spatial distribution of fluctuating charges, and by their correlation time  $\tau_c^c$ .

If we take  $0.1n_D$  as a reasonable estimate for the concentration of charged donors (compensation degree 10%), the best agreement with the experimental dependences of the warm-up rate on the magnetic field (Fig. 6.2) for dielectric samples is obtained at  $\tau_c^c \approx 0.9$  ms, that *a posteriori* confirms the assumption of slow, as compared to  $T_2$ , time scale of charge fluctuations. Such long correlation times are characteristic of large-scale charge fluctuations [76], which are just what is required to create alternating electric fields that cover all nuclei in the bulk of the crystal.

The difference in the characteristic fields for suppressing quadrupole relaxation in microstructures and bulk layers is explained by the increase in the local field in microstructures that we found (see Chapter 5) to arise due to the static quadrupole splitting of nuclear spin levels as a result a slight deformation in such structures.

In sample I (undoped quantum well), the high warm-up rate in weak fields is most likely due to large-scale fluctuations of electric fields created by charged impurities or defects in the barriers. This is confirmed by the fact that in this structure the rise time of the nuclear polarization upon pumping turns out to be two orders of magnitude longer than the relaxation time in the dark. Such a paradoxical behavior, the opposite of what is usually observed in bulk gallium arsenide, can only be explained by the screening of fluctuating electric fields by photoexcited charge carriers.

Various contributions to spin-lattice relaxation in n-GaAs are shown schematically in Figure 6.7.



**Figure 6.7.** a) The transition from relaxation of the angular momentum to energy relaxation as the main component of the spin-lattice relaxation of nuclei with a decrease in the magnetic field to values comparable with the local fields of spin-spin interactions. b) The main mechanisms of spin-lattice relaxation in n-GaAs: diffusion-limited hyperfine relaxation at  $B^2 \gg B_L^2$  and quadrupole warm-up in weak magnetic fields..

### 6.2.2. Specifics of dynamic polarization and relaxation of nuclear spins in dielectric p-GaAs

The main difference between the dynamics of spin-lattice relaxation in p-type gallium arsenide and what is observed in various n-GaAs structures is the complete absence of the slow component of nuclear magnetization or spin temperature, varying on a scale of tens or hundreds of seconds. Both pumping and nuclear spin relaxation occur over times of the order of 100 milliseconds. In addition, the relaxation rate is independent of the magnetic field and decreases sharply with decreasing temperature at temperatures of the order of 5 K and lower (Fig. 6.4).

Subsecond relaxation times show that spin diffusion does not participate in the formation and decay of nuclear magnetization: the length of nuclear spin diffusion over a time of 100 ms is only 1 nanometer. Consequently, nuclear spin polarization relaxes in

the same place where it was created by pumping. Although hyperfine interaction with holes bound at acceptors can lead to dynamic polarization of nuclear spins [77], the Hanle curves measured on samples G and H unambiguously indicate the absence of optical orientation of holes and the purely electronic nature of the observed manifestations of the interaction of spins of photoexcited carriers with nuclei. Therefore, the dynamic polarization of nuclei occurs in the usual way, through interaction with localized electrons [1].

The absence of spin diffusion during pumping in p-GaAs can be explained on the basis of the model proposed by Paget, Amand, and Korb [33]. Since donor centers in p-type semiconductor in equilibrium are not filled with electrons, the dynamic polarization of nuclei is carried out by photoexcited electrons trapped by donors. The rate of dynamic polarization is proportional to the electron density, which exponentially decreases with distance from the donor. The capture and recombination of photoexcited electrons leads to the appearance of time-dependent electric fields around donors, inducing quadrupole warm-up of the nuclear spin system. The Coulomb field, in contrast to the electron density, slowly decreases with distance. As a result, nuclear spins are polarized only in the vicinity of the donor center, within the “quadrupole radius”  $a_Q \approx 0.4a_B$  [33].

The Paget-Amand-Korb mechanism, based on the recharging of a donor by photoexcited electrons, works only under conditions of optical pumping. What causes relaxation of nuclear spin polarization in the dark, when the donors are empty? Most likely, this is a quadrupole relaxation induced by the electric field of a charged acceptor located near the donor. Charged acceptor centers are formed in a partially compensated p-type semiconductor as a result of the recombination of one of the acceptor-bound holes with an electron descended from the donor. At zero temperature, a negative charge corresponding to the absence of a hole, with a 97.4% probability, is located at the acceptor closest to the donor [37]. At a finite temperature, holes can jump from more distant acceptors to this charged center, leading to its neutralization and a sharp decrease in the electric field. The time dependence of the electric field in the vicinity of the donor in this case has the form of a random telegraph signal.

For simplicity, let us consider charge hopping between the acceptor (1) closest to the charged donor and another acceptor (2) located at a greater distance. Jumps occur at random times, with the average time of the continuous stay in state (1) being equal to  $\tau_1$ , and in state (2) to  $\tau_2$ . The electric field at a nucleus in the vicinity of the donor switches between two values. Denote them by  $\vec{E}_1$  and  $\vec{E}_2$ . Then the average value of the electric field at the nucleus will be equal to

$$\langle \vec{E} \rangle = \frac{\vec{E}_1 \tau_1 + \vec{E}_2 \tau_2}{\tau_1 + \tau_2} \quad (6.13)$$

while its mean squared fluctuation equals

$$\delta E^2 = \left\langle \left( \vec{E} - \langle \vec{E} \rangle \right)^2 \right\rangle = (\vec{E}_1 - \vec{E}_2)^2 \frac{\tau_1 \tau_2}{(\tau_1 + \tau_2)^2} \quad (6.14)$$

The autocorrelation function of the fluctuating part of electric field,  $\vec{E}_f = \vec{E} - \langle \vec{E} \rangle$ , which is an asymmetric random telegraph signal, is determined by the shortest of the two times:

$$\langle E_f(0) E_f(t) \rangle = (\vec{E}_1 - \vec{E}_2)^2 \frac{\tau_1 \tau_2}{(\tau_1 + \tau_2)^2} \exp\left(-t \left( \frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2} \right)\right) \quad (6.15)$$

and its Fourier transform, giving the spectral power density of fluctuations, is

$$\delta E_\omega^2 = (\vec{E}_1 - \vec{E}_2)^2 \frac{(\tau_1 \tau_2)^2}{(\tau_1 + \tau_2)^3} \frac{1}{1 + \omega^2 (\tau_1 \tau_2)^2 / (\tau_1 + \tau_2)^2} \quad (6.16)$$

The absence of magnetic-field dependence of  $T_1$  makes one to conclude that the frequency spectrum of fluctuating fields is much broader than the spectrum of nuclear spin fluctuations. Thus, we are interested in the lowest frequency range,  $\omega \ll \frac{\tau_1 + \tau_2}{\tau_1 \tau_2}$ ,

where Eq. (6.16) simplifies:

$$\delta E_\omega^2 = (\vec{E}_1 - \vec{E}_2)^2 \frac{(\tau_1 \tau_2)^2}{(\tau_1 + \tau_2)^3} = \delta E^2 \tau_c \quad (6.17)$$

where  $\tau_c = \frac{\tau_1 \tau_2}{\tau_1 + \tau_2}$ , and  $\delta E^2$  is given by Eq. (6.14).

The times  $\tau_1$  and  $\tau_2$  can be written as

$$\begin{aligned}\tau_1 &= \frac{1}{wn_{ph}} \\ \tau_2 &= \frac{1}{w(1+n_{ph})}\end{aligned}\tag{6.18}$$

where  $w$  is the squared matrix element of the phonon-assisted tunnel jump, and  $n_{ph}$  is the phonon number, determined by the Planck distribution:

$$n_{ph} = \frac{1}{\exp(\varepsilon_{21}/k_B T) - 1}\tag{6.19}$$

where  $\varepsilon_{21}$  is the energy difference between states (2) and (1) (here (1) is the ground state with the nearest acceptor charged). From Eqs. (2), (6.17), (6.18) and (6.19) we obtain

$$\delta E_\omega^2 = (\vec{E}_1 - \vec{E}_2)^2 w^{-1} \frac{(1 - \exp(-\varepsilon_{21}/k_B T)) \exp(-\varepsilon_{21}/k_B T)}{(1 + \exp(-\varepsilon_{21}/k_B T))^3}\tag{6.20}$$

To obtain the expression for relaxation rate [12], the right-hand side of Eq. (6.17) should be multiplied by  $b_q^2$ , where

$$b_q = \frac{eQ\beta_Q}{4\hbar I(2I-1)}\tag{6.21}$$

is the coefficient connecting the angle-averaged matrix element of the quadrupole interaction with the electric field [33]. Finally, we get

$$T_1^{-1} = \Delta E^2 w^{-1} \left( \frac{eQ\beta_Q}{4\hbar I(2I-1)} \right)^2 \frac{(1 - \exp(-\varepsilon_{21}/k_B T)) \exp(-\varepsilon_{21}/k_B T)}{(1 + \exp(-\varepsilon_{21}/k_B T))^3}\tag{6.22}$$

Eq.(6.22) allows one to calculate the temperature dependence of  $T_1$ . To this end, it is necessary to estimate  $\varepsilon_{21}$  and  $\Delta E^2 = \langle (\vec{E}_1 - \vec{E}_2)^2 \rangle$ . These values are determined by Coulomb energies and electric fields of two charges positioned at the nearest and next-nearest acceptor, at distances  $r_{DA}^{(1)}$  and  $r_{DA}^{(2)}$  from the donor. As an estimate, one can take the positions of maxima of distribution functions of nearest and next-nearest acceptors:

$$\begin{aligned}
F_{DA}^{(1)}(r) &= 4\pi r^2 n_A \exp\left(-\frac{4}{3}\pi r^3 n_A\right) \\
F_{DA}^{(2)}(r) &= \frac{16}{3}\pi^2 r^5 n_A^2 \exp\left(-\frac{4}{3}\pi r^3 n_A\right)
\end{aligned}
\tag{6.23}$$

These functions reach their maximum values at the following distances from the donor

$$\begin{aligned}
R_{DA}^{(1)} &= (2\pi n_A)^{-1/3} \\
R_{DA}^{(2)} &= \left(\frac{4\pi}{5} n_A\right)^{-1/3}
\end{aligned}
\tag{6.24}$$

As a result, we get

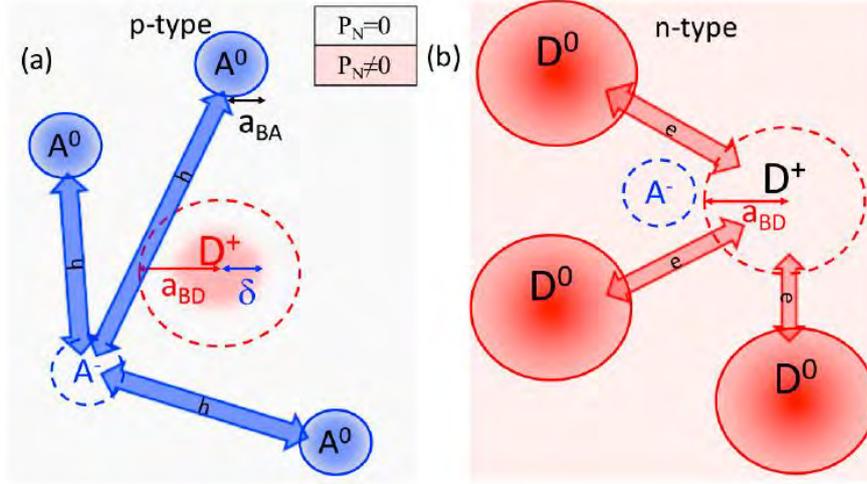
$$\begin{aligned}
\varepsilon_{12} &= -\frac{e^2}{\varepsilon} \left( \frac{1}{R_{DA}^{(1)}} - \frac{1}{R_{DA}^{(2)}} \right) \\
\Delta E^2 &= \frac{e^2}{\varepsilon^2} \left( \left( \frac{1}{R_{DA}^{(1)}} \right)^4 - \left( \frac{1}{R_{DA}^{(2)}} \right)^4 \right)
\end{aligned}
\tag{6.25}$$

Where the squared electric field is averaged over angular distribution of the two acceptors.

The fitting of the experimental dependences of  $T_1$  is shown in Fig.6.4 by solid curves. The best agreement for the temperature dependences was obtained for the only fitting parameter  $\tau_{ph} = w^{-1}$  (the characteristic time of a phonon-assisted jump) of  $3 \mu s$  for sample G and  $5 \mu s$  for sample H. Since the condition  $\gamma_N B \tau_c \ll 1$  was satisfied in the studied range of magnetic fields, there is no dependence of  $T_1$  on the magnetic field, in agreement with experiment results.

Fig. 6.8 schematically shows the differences in quadrupole relaxation in p- and n-type semiconductors. In n-type crystals and structures, nuclear spins are dynamically polarized by electrons at neutral donors, and nuclear polarization propagates by spin diffusion into the bulk of the crystal. In the dark, the spin system of nuclei remote from donors warms up under the influence of large-scale fluctuations in the electric field, characterized by long correlation times. In p-type crystals, nuclear spins are dynamically polarized by photoexcited electrons trapped on charged donors, and spin diffusion into the crystal bulk is blocked by quadrupole relaxation due to donor recharging during pumping. In the dark, nuclear polarization near a charged donor

relaxes under the influence of a rapidly fluctuating electric field arising from charge hopping between acceptors closest to the donor.



**Figure 6.8.** Schemes of quadrupole relaxation in p-type (a) and n-type (b) GaAs.

### 6.3. Mechanisms of nuclear spin-lattice relaxation in metallic n-GaAs.

The main mechanism of nuclear spin-lattice relaxation in metals is the Korringa mechanism — the scattering of Fermi-edge electrons by nuclear spins [78, 12]. In degenerate (metallic) semiconductors, the density of electronic states at the Fermi level is orders of magnitude lower, which accordingly reduces the relaxation rate.

In samples A, B, and F studied in this work, the electron concentration was not much higher, or of the order of the threshold concentration of the insulator-metal transition  $((1 \div 2) \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3})$ . Nevertheless, the spin relaxation rate in magnetic fields of 100–1250 G shows a linear temperature dependence in the temperature range of 5–30 K (Fig. 6.3). In the most doped sample F ( $n_D = 9 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ,  $E_F \approx 10 \text{ meV}$ ) at temperatures from 10 to 30 K, the experimentally measured values of  $T_1^{-1}$ , without fitting parameters, fall on the Korringa theoretical dependence:

$$T_1^{-1}(T) = \frac{\pi}{\hbar} \langle A^2 \rangle v_0^2 \rho_F^2 k_B T \quad (6.26)$$

where  $\langle A^2 \rangle$  is the squared hyperfine constant, averaged over isotopes,  $v_0$  is the primitive

cell volume, and  $\rho_F = \frac{1}{\pi^2 \hbar^2} (3\pi^2 n_D)^{1/3}$  is the density of states on the Fermi surface. The

slope of the temperature dependence of  $T_1^{-1}$  in sample A ( $n_D = 4 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) also follows Eq.(6.26), but there is a constant background component, not described by Korringa's law and corresponding to an additional relaxation channel with  $T_1 \approx 400 \text{ c}$ . Note that in sample F  $T_1^{-1}(T)$  also stops at approximately the same constant level at temperatures less than 10K. Similar times are characteristic of diffusion-limited hyperfine relaxation in dielectric n-GaAs (see above). It can be assumed that in metal samples they have the same nature. Indeed, the relaxation of nuclear spins on electrons localized at close pairs of charged donors with a characteristic time of 10 seconds was observed in sample B ( $n_D = 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) (see Chapter 4). Such pairs, capable of binding an electron, in spite of the screening by electron gas, can play the role of killer centers towards which nuclear spin polarization is transferred by diffusion. The characteristic size of the pair is determined by the screening radius of the degenerate electron gas:

$$r_D = \frac{1}{2} \left( \frac{\pi a_B^3}{3n_D} \right)^{1/6} \quad (6.27)$$

The concentration of pairs can be estimated as the product of the concentration of donors and the probability of a second donor falling within the range  $r_D$  from the first :

$$n_p \approx \frac{4}{3} \pi n_D^2 r_D^3 \exp\left(-\frac{4}{3} \pi n_D r_D^3\right) \quad (6.28)$$

The relaxation rate due to spin diffusion to pairs can now be estimated using the Khutsishvili-De Gennes formula:

$$T_{Dp}^{-1} \approx 4\pi D_N n_p r_D \quad (6.29)$$

For sample F ( $n_D = 9 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) this gives  $r_D = 7.5 \text{ nm}$ ,  $n_p \approx 1.2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  and  $T_{Dp} \approx 100 \text{ c}$ , and for sample A ( $n_D = 4 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ )  $r_D = 8.6 \text{ nm}$ ,  $n_p \approx 3.8 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  and  $T_{Dp} \approx 250 \text{ c}$ . As one can see, the estimates in the model of relaxation on pairs of donors give a similar in order of magnitude, but still somewhat higher relaxation rate than obtained in the experiment. In addition, in the heavily doped sample F, the contribution of localized states is not observed at temperatures above 10 K, which may be due to delocalization of electrons with increasing temperature under conditions of strong screening by electron gas.

On the whole, the experimentally obtained picture of spin-lattice relaxation of nuclei in samples with a degenerate electron gas suggests a transition regime from diffusion-limited hyperfine relaxation on localized electronic states to the Korringa mechanism, which is observed at doping levels lying slightly above the dielectric-metal transition. The dependence of  $T_1$  on the magnetic field in such structures qualitatively resembles that observed in dielectric n-GaAs, but is less pronounced - the rise in the relaxation rate in weak fields is not so strong, about 3 times instead of one or two orders of magnitude in dielectric structures. Its origins are not entirely clear. Shielding by electron gas makes warm-up by fluctuations of the electric field unlikely. The Korringa mechanism in presence of the dipole – dipole interaction between nuclear spins should lead to an increase in the relaxation rate by a factor of  $\xi \approx 3$ , when the magnetic field decreases below the local one, due to correlation of the electron field at different nuclei [12]. However, the local field in the studied heterostructures is several times larger than it should be under the dipole – dipole interaction, which is most likely due to the quadrupole splitting of the nuclear levels induced by deformation (see Chapter 5). For the quadrupole interaction,  $\xi \approx 1$  [79] and no substantial increase in the relaxation rate in weak fields is therefore expected.

### **Main results of Chapter 6:**

1. The main mechanisms of spin-lattice relaxation of nuclei in the dielectric phase of n-GaAs at temperatures below 20 K are hyperfine relaxation of the spins of nuclei in contact with electrons localized on donors, spin diffusion to donor centers, and quadrupole relaxation. Quadrupole relaxation is induced by alternating electric fields arising from spatio-temporal charge fluctuations in the impurity band. This mechanism determines the relaxation (warm-up) rate of nuclear spins distant from donors in magnetic fields less than the local field, and is suppressed by stronger magnetic fields.
2. In the metallic phase of n-GaAs, at donor concentrations slightly above the insulator-metal transition, the spin-lattice relaxation is determined by the

Korringa mechanism (scattering of free electrons on the Fermi surface by fluctuations of the nuclear magnetization), as well as by hyperfine interaction with electrons localized at close pairs of ionized donors.

3. In dielectric p-type GaAs, the spin-lattice relaxation time of optically oriented nuclear spins is three orders of magnitude shorter than in n-GaAs and amounts to tens or hundreds of milliseconds. This is due to the fact that the dynamic polarization of nuclear spins is provided by photoexcited electrons trapped at charged donor centers. The warm-up of nuclear spins in the vicinity of sparse donors occurs through quadrupole interaction under the influence of fluctuating electric fields caused by the recharging of the donor during pumping, and due to charge hopping over the acceptors closest to the donor after switching off the pump.

*The studies that make up the contents of this chapter are published in Refs.[59-61, 67, 72, 73, 75, 77].*

## Conclusion

As a result of the studies on which this dissertation is based, the following general picture of the relaxation of the nonequilibrium angular momentum and energy in the interacting spin systems of resident electrons and lattice nuclei in direct-gap semiconductors is formed.

The relaxation of the angular momentum of electrons occurs due to its transfer to the nuclear spin system through hyperfine interaction and to the crystal lattice due to spin-orbit interaction. In the case of electron localized on donors, the relative efficiency of these two fundamental relaxation channels is governed by the correlation time of the electron spin on the donor, which at low temperatures is determined mainly by the exchange interaction between localized electrons, and decreases with increasing donor concentration. Spin-orbit relaxation in the dielectric phase occurs due to the anisotropic part of the exchange interaction arising in non-centrosymmetric semiconductors as a result of spin rotation by the spin-orbit field during tunneling. In heavily doped crystals with a degenerate electron gas (metallic phase), the relaxation of both the angular momentum and energy is determined by the Dyakonov-Perel mechanism with scattering by charged donors.

Neither hyperfine nor anisotropic exchange interaction provide transfer of energy from the electron spin system to the lattice. Therefore, a spin temperature different from the lattice temperature can be established in the spin ensemble of localized electrons. The spin temperature of the electron spin system is equalized with the lattice temperature due to phonon-induced hopping of electrons from neutral to charged donors within a small number of pairs of closely spaced donor centers.

In a nuclear spin system, the spin temperature is almost always established, including in microstructures with residual lattice deformation, where the spin heat capacity of nuclei increases many times due to quadrupole interaction.

In the dielectric phase of n-type semiconductors, the warm-up (energy relaxation) of the nuclear spin system in weak magnetic fields occurs through quadrupole interaction with alternating electric fields created by charge fluctuations in the impurity band. In magnetic fields exceeding the local field of spin-spin interactions of nuclei, quadrupole warm-up is suppressed, and the hyperfine interaction with localized electrons, limited by spin diffusion to impurity centers, becomes the main relaxation mechanism. This mechanism provides relaxation of both energy and angular momentum. The same is true for the Korringa mechanism, which determines the spin-lattice relaxation of nuclei in the metallic phase.

In p-type semiconductors, the dynamic polarization of nuclear spins during optical pumping is provided by photoexcited electrons trapped at charged donors and is limited to the region inside the Bohr radius of the donor, since the electric fields, fluctuating due to the donor recharging, warm up the nuclear spins around the donor. After the pump is turned off, the polarization of nuclear spins relaxes under the influence of fluctuating fields created by charge hopping between acceptors closest to the donor.

All these features of electronic and nuclear spin relaxation were experimentally demonstrated on gallium arsenide as a model semiconductor. The developed theory is largely applicable to all III – V and II – VI cubic semiconductors, as well as to wurtzite semiconductors (with obvious modifications). An important exception are crystals in which all nuclei have spin  $\frac{1}{2}$  (for example, CdTe). In such materials, quadrupole nuclear relaxation mechanisms are absent. A systematic experimental study of spin-lattice relaxation in such semiconductors, as well as in various quantum-well structures, would constitute a natural and very useful continuation of this work.

### **Acknowledgments.**

I am grateful to all colleagues from Ioffe Institute (R.I. Dzhioev, V.K. Kalevich, V.L.Korenev, A.V. Koudinov, Yu.G. Kusraev, M.V. Lazarev, B.R. Namozov, M.M. Glazov, D.S. Smirnov), Spin Optics Laboratory of St. Petersburg State University (S.Yu. Verbin, I.Ya. Gerlovin, V.S. Zapasskii, I.V. Ignatiev, G.G. Kozlov, M.S. Kuznetsova, V. M.Litvyak, M.Yu. Petrov, I.I. Ryzhov, R.V. Cherbunin, A.V.Kavokin), University of Montpellier (M.R.Vladimirova, D. Skalbert, S. Cronenberger) and Technical University of Dortmund (V.V. Belykh , M.Kotur, P.S.Sokolov, D.R.Yakovlev, M. Bayer, R.Mocek, D.Suter), for the pleasure of working together on experimental and theoretical problems in physics of electron and nuclear spin systems, some of which are presented in this thesis.

I am grateful to Professor I.V. Ignatiev and my wife Yu.G. Boyarinova, without whose urging and support the results of this work would never have turned into a dissertation.

I would especially like to thank Masha Vladimirova, who put my thoughts in order for many years of cooperation and provided invaluable assistance in preparing the dissertation manuscript.

## References

1. Optical Orientation, Modern Problems in Condensed Matter Science Series, Vol. 8/ edited by F. Meier and B. Zakharchenya — North-Holland, Amsterdam, 1984 (Ch.2 by M.I.Dyakonov and V.I.Perel)
2. *Gr'ncharova E.I., Perel V.I.*, Relaxation of nuclear spins interacting with holes in semiconductors// Fiz. Tekhn. Poluprovodnikov — 1977 — Vol.11 — P.1697 [Sov. Phys. Semicond. 11, 997 (1977)]
3. *Fischer J., Coish W. A., Bulaev D. V., and Loss D.*, Spin decoherence of a heavy hole coupled to nuclear spins in a quantum dot// Phys. Rev. B — 2008 — Vol.78 — P.155329.
4. *Shchepetilnikov A. V., Frolov D. D., Nefyodov Yu. A., Kukushkin I.V., Smirnov D. S., Tiemann L., Reichl C., Dietsche W., and Wegscheider W.*, Nuclear magnetic resonance and nuclear spin relaxation in AlAs quantum well probed by ESR, Supplemental materials// Phys. Rev. B — 2016 — Vol.94 — P.241302.
5. Spin Physics in Semiconductors (2nd edition) / ed. by M. I. Dyakonov — Berlin : Springer-Verlag, 2017. Ch.1
6. *Dresselhaus G.* Spin-Orbit Coupling Effects in Zinc Blende Structures// Phys. Rev. — 1955 — Vol.100 — P.580.
7. *Optical Orientation*, Modern Problems in Condensed Matter Science Series, Vol. 8, edited by F. Meier and B. Zakharchenya (North-Holland, Amsterdam, 1984), Ch.3 by A.N.Titkov and G.E.Pikus
8. *Ohkawa F.J., Uemura Y.J.* Quantized surface states of a narrow-gap semiconductor// J. Phys. Soc. Jpn. — 1974 — Vol.37 — P.1325.
9. *Vasko F.T.* Spin splitting in the spectrum of two-dimensional electrons due to surface potential// Sov. Phys. JETP Lett. — 1979 — Vol.30 — P.541.

10. *Dyakonov M.I., Kachorovskii V.Yu.* Spin Relaxation of Two Dimensional Electrons in Noncentrosymmetric Semiconductors// Fiz.Tech.Poluprov. — 1986 — Vol.20 — P.178 [Sov. Phys. Semicond. 20, 110 (1986)]
11. *Kavokin K.V., Portnoi M.E.* Spin-orbit terms in multi-subband electron systems: a bridge between bulk and two-dimensional Hamiltonians// Semiconductors — 2008 — Vol.42 — P.989
12. *The Principles of Nuclear Magnetism/ A. Abragam* — Oxford, University Press, 1961.
13. *Optical Orientation, Modern Problems in Condensed Matter Science Series, Vol. 8/* edited by F. Meier and B. Zakharchenya — North-Holland, Amsterdam, 1984 (Ch.3 by Merkulov and Fleisher)
14. *Brun E., Mahler R. J., Mahon H., and Pierce W. L.* Electrically induced nuclear quadrupole spin transitions in a GaAs single crystal// Phys. Rev. — 1963 — Vol.129 — P/1965.
15. *Quantum Mechanics/ Landau L D and Lifshitz E M* — Oxford: Pergamon 1977.
16. *Herring C.*, Critique of the Heitler-London method of calculating spin couplings at large distances // Review of Modern Physics — 1962. — Vol.34. — P.631.
17. *Gor'kov L P and Pitaevskii L P.*, Energy of terms splitting in the hydrogen molecule// Dokl. Akad. Nauk SSSR — 1963 — Vol.151 — P.822 [Sov. Phys.-Dokl. 1964 Vol.8 P.788]
18. *Gor'kov L P and Pitaevskii L P.*, Corrections to the paper “Energy of terms splitting in the hydrogen molecule” Dokl. Akad. Nauk SSSR — 1964 — Vol.158 — P.1246
19. *Herring C., Flicker M.*, Asymptotic exchange coupling of two hydrogen atoms// Physical Review— 1964. — Vol.34. — P.A362.
20. *Massey H. S. W.*, Theory of the Scattering of Slow Electrons// Rev. Mod. Phys. — 1956 — Vol. 28 — P.199.

21. *Kavokin K. V.* Spin relaxation of localized electrons in n-type semiconductors// *Semic. Sci. Technol.* — 2008. — Vol. 23. — 114009.
22. *Optical Orientation* / ed. by F. Meier, B. P. Zakharchenya. — Amsterdam: North-Holland, 1984.
23. *Spin Physics in Semiconductors (2nd edition)* / ed. by M. I. Dyakonov — Berlin : Springer-Verlag, 2017.
24. *Paget D.*, Optical detection of NMR in high-purity GaAs under optical pumping: Efficient spin-exchange averaging between electronic states// *Phys. Rev. B.* — 1981. — Vol. 24. — P.3776.
25. *Spin Physics in Semiconductors (2nd edition)* / ed. by M. I. Dyakonov.— Berlin : Springer-Verlag, 2017. Ch.12 “Dynamic nuclear polarization and nuclear fields” by V.K.Kalevich, K.V.Kavokin, I.A.Merkulov and M.R.Vladimirova.
26. *Dyakonov M. I., Perel V. I.* Hyperfine interaction in optical orientation of electrons in semiconductors // *Z. Eksp. Teor. Fiz.* — 1973. — Vol. 65. —P. 362.
27. *Dyakonov M. I., Perel V. I.* Spin Orientation of Electrons Associated with the Interband Absorption of Light in Semiconductors // *Z. Eksp. Teor. Fiz.* — 1971. — Vol. 60. —P. 1954.
28. *Kalevich V. K. and Korenev V. L.* Optical polarization of nuclei and ODNMR in GaAs/AlGaAs quantum wells // *Appl. Magn. Reson.* — 1991 — Vol.2 — P.397.
29. *Merkulov I. A., Efros A. L., Rosen M.* Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots // *Phys. Rev. B* — 2002 — Vol.65 — P.205309. DOI: 10.1103/PhysRevB.65.205309.
30. *P.F.Braun, X.Marie, L.Lombeze, B.Urbaszek, T.Amand, P.Renucci, V.Kalevich, K.Kavokin, O.Krebs, P.Voisin, Y.Masumoto*, Direct observation of the electron spin relaxation induced by nuclei in quantum dots// *Phys.Rev. Letters* — 2005 — Vol.94 — P.116601.

31. *Dzhioev R. I. et al.* Manipulation of the Spin Memory of Electrons in n-GaAs // Phys. Rev. Lett. — 2002 — Vol.88 — P.256801.  
DOI:10.1103/PhysRevLett.88.256801.
32. *Paget D.* Optical detection of NMR in high-purity GaAs: Direct study of the relaxation of nuclei close to shallow donors// Phys. Rev. B — 1982 — Vol.25 — P.4444.
33. *Paget D., Amand T., and Korb J. P.* Light-induced nuclear quadrupolar relaxation in semiconductors// Phys. Rev. B — 2008 — Vol.77 — P.245201.
34. *Kavokin K.V.* Anisotropic exchange interaction of localized conduction-band electrons in semiconductors// Phys.Rev.B — 2001 — Vol.64 — P.075305.
35. *Dzyaloshinskii I.* A thermodynamic theory of “weak” ferromagnetism of antiferromagnetics// Phys. Chem. Solids — 1958 — Vol.4 — P.241.
36. *Moriya T.* Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism// Phys. Rev. — 1960 — Vol.120 — P.91.
37. *Electronic Properties of Doped Semiconductors/ Shklovskii B.I. and. Efros A.L* — Springer-Verlag, Berlin, 1984.
38. *Kavokin K.V.* Symmetry of anisotropic exchange interactions in semiconductor nanostructures// Phys. Rev. B — 2004 — Vol.69 — P.075302.
39. *Dzhioev R.I., Zakharchenya B.P., Korenev V.L., and Stepanova M.N.* Spin diffusion of optically oriented electrons and photon entrainment in n-gallium arsenide// Fiz. Tverd. Tela — 1997 — Vol.39 — P.1975 [Phys. Solid State 39, 1765]
40. *Kikkawa J.M. and Awschalom D.D.* Resonant Spin Amplification in n-Type GaAs// Phys. Rev. Lett. — 1998 — Vol.80 — P.4313.
41. *Kavokin K.V.* Optical manifestations of electron spin transport and relaxation in semiconductors// physica status solidi (a) — 2002 — Vol.191 — P.221.

42. *Dzhioev R.I., Kavokin K.V., Korenev V.L., Lazarev M.V., Meltser B.Ya., Stepanova M.N., Zakharchenya B.P., Gammon D., Katzer D.S.* Low-temperature spin relaxation in n-type GaAs// *Phys.Rev.B* — 2002 — Vol.66 — P.245204.
43. *Belykh V. V., Kuntsevich A. Yu., Glazov M. M., Kavokin K. V., Yakovlev D. R., and Bayer M.* Quantum Interference Controls the Electron Spin Dynamics in n-GaAs// *Phys. Rev. X* — 2018 — Vol.8 — 031021.
44. *Belykh V.V., Kavokin K.V., Yakovlev D.R., Bayer M.* Electron charge and spin delocalization revealed in the optically probed longitudinal and transverse spin dynamics in n-GaAs// *Physical Review B* — 2017 — Vol.96 — P.241201.
45. *Lonnemann J. G., Rugeramigabo E. P., Oestreich M., and Hübner J.* Closing the gap between spatial and spin dynamics of electrons at the metal-to-insulator transition// *Phys. Rev. B* — 2017— Vol.96 — P.045201.
46. *Quantum Processes in Semiconductors/ Ridley B.K* — Clarendon Press, Oxford, 1982.
47. *Dzhioev R.I., Kavokin K.V., Korenev V.L., Lazarev M.V., Poletaev N.K., Zakharchenya B.P., Stinaff E.A., Gammon D., Bracker A.S., Ware M.E.* Suppression of Dyakonov-Perel spin relaxation in high-mobility n-GaAs// *Phys. Rev. Lett.* — 2004 — Vol.93 — P.216402.
48. *Jusserand B., Richard D., Allan G., Priester C., and Etienne B.* Spin orientation at semiconductor heterointerfaces// *Phys. Rev. B* — 1995 — Vol.51 — P.4707(R); *Richards D. and Jusserand B.* Spin energetics in a GaAs quantum well: Asymmetric spin-flip Raman scattering// *ibid.* — 1999 — Vol.59 — P.R2506.
49. *Khutsishvili G.* Nuclear magnetic relaxation in ionic crystals// *Sov. Phys. JETP* — 1957 — Vol.4. — P.382 [*Zh.Exp.Teor.Fiz.* Vol.31, P.424, 1956].
50. *De Gennes P. G.* Sur la relaxation nucleaire dans les cristaux ioniques// *J. Phys. Chem. Solids* — 1958 — Vol.7 — P.345.

51. *Artemova E.S. and Merkulov I.A.* Nuclear field and Faraday effect in semiconductors// *Sov. Phys. Solid State* — 1985 — Vol.27 — P.941 [Fiz.Tv.Tela Vol.27 P.1558, 1985].
52. *Giri R., Cronenberger S., Vladimirova M., Scalbert D., Kavokin K.V., Glazov M.M., Nawrocki M., Lemaître A., and Bloch J.* Giant photoinduced Faraday rotation due to the spin-polarized electron gas in an n-GaAs microcavity// *Phys.Rev.B* — 2012 — Vol.85. — P.195313.
53. *Giri R., Cronenberger S., Glazov M. M., Kavokin K. V., Lemaître A., Bloch J., Vladimirova M., Scalbert D.* Nondestructive Measurement of Nuclear Magnetization by Off-Resonant Faraday Rotation” // *Physical Review Letters*, 2013. — Vol. 111, — № 8. — P. 087603
54. *Aleksandrov E. B. and Zapasskii V. S.* Magnetic resonance in the Faraday-rotation noise spectrum.// *JETP* — 1981 — Vol.54 — P.64.
55. *Zapasskii, V. S.* Spin-noise spectroscopy: from proof of principle to applications.// *Advances in Optics and Photonics* — 2013 — Vol.5 — P.131. doi: 10.1364/AOP.5.000131.
56. *Ryzhov I. I., Poltavtsev S.V., Kavokin K.V., Glazov M.M., Kozlov G.G., Vladimirova M., Scalbert D., Cronenberger S., Kavokin A.V., Lemaître A., Bloch J., Zapasski V.S.*, Measurements of nuclear spin dynamics by spin-noise spectroscopy.// *Applied Physics Letters* — 2015 — V.106 — P.242405. doi: 10.1063/1.4922771.
57. *Ryzhov I. I., Kozlov G. G., Smirnov D. S., Glazov M. M., Efimov Yu. P., Eliseev S. A., Lovtcius V. A., Petrov V. V., Kavokin K. V., Kavokin A. V., and Zapasski V. S.*, Spin noise explores local magnetic fields in a semiconductor// *Sci. Rep.* — 2016 — V.6 — P.21062.
58. *Kalevich V.K., Kulkov V.D., and Fleisher V.G.*, Optical cooling of the nuclear spin system of a semiconductor, combined with adiabatic demagnetization// *Izvestiya Akademii Nauk SSSR Seriya Fizicheskaya* — 1982 — V.46 — P.492 [Bull. Acad. Sci. USSR, Phys. Ser. 46, 70 (1982)].

59. *Kotur, M.; Dzhioev, R. I.; Kavokin, K. V.; et al.* Nuclear Spin Relaxation Mediated by Fermi-Edge Electrons in n-Type GaAs// JETP LETTERS — 2014 — Vol.99, P.37.
60. *Kotur M., Dzhioev R. I., Vladimirova M., Jouault B., Korenev V. L., and Kavokin K. V.*, Nuclear spin warm up in bulk n-GaAs// Phys. Rev. B — 2016 — Vol.94 — P.081201(R).
61. *Vladimirova M, Cronenberger S, Scalbert D, Kotur M, Dzhioev RI, Ryzhov II, Kozlov GG, Zapasskii VS, Lemaître A, Kavokin KV*, Nuclear spin relaxation in n-GaAs: From insulating to metallic regime// Physical Review B — 2017 — Vol.95 — P.125312.
62. *Purcell E.M., Pound R.V.* A Nuclear Spin System at Negative Temperature// Phys. Rev. — 1951 — Vol.81 — P.279.
63. *Abragam A. and Proctor W. G.*, Spin temperature// Phys. Rev. — 1958 — Vol.109 — P.1441.
64. *Chekhovich E. A., Ulhaq A., Zallo E., Ding F., Schmidt O. G., and Skolnick M. S.*, Measurement of the spin temperature of optically cooled nuclei and GaAs hyperfine constants in GaAs/AlGaAs quantum dots// Nat. Mater. — 2017 — Vol.16 — P.4959.
65. Spin Temperature and Nuclear Magnetic Resonance in Solids/ Goldman M. — International Series of Monographs on Physics (Clarendon, Oxford, UK, 1970).
66. Statistical physics/ *Landau L D and Lifshitz E M* — Butterworth-Heinemann 1980; 3 edition, Chapter 12.
67. *Vladimirova M, Cronenberger S, Scalbert D, Ryzhov II, Zapasskii VS, Kozlov GG, Lemaître A, Kavokin KV*, Spin temperature concept verified by optical magnetometry of nuclear spins// Physical Review B — 2018 — Vol.97 — P.041301.
68. *Paget D., Lampel G., Sapoval B., and Safarov V.*, Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions// Phys. Rev. B — 1977 — Vol.15 — P.5780.

69. *Flisinski K., Gerlovin I. Y., Ignatiev I. V., Petrov M. Y., Verbin S. Y., Yakovlev D. R., Reuter D., Wieck A. D., and Bayer M.*, Optically detected magnetic resonance at the quadrupole-split nuclear states in (In,Ga)As/GaAs quantum dots// *Phys. Rev. B* — 2010 — Vol.82 — P.081308.
70. *Eickhoff M., Lenzmann B., Suter D., Hayes S. E., and Wieck A. D.*, Mapping of strain and electric fields in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As quantum-well samples by laser-assisted NMR// *Phys. Rev. B* — 2003 — Vol.67 — P.085308.
71. *Oja A. S. and Lounasmaa O. V.*, Nuclear magnetic ordering in simple metals at positive and negative nanokelvin temperatures// *Rev. Mod. Phys.* — 1997 — Vol.69 — P.1.
72. *Mocek R.W., Korenev V.L., Bayer M., Kotur M., Dzhioev R.I., Tolmachev D.O., Cascio G., Kavokin K.V., Suter D.* High-efficiency optical pumping of nuclear polarization in a GaAs quantum well// *Physical Review B* — 2017 — Vol.96 — P.201303.
73. *Kotur M., Dzhioev R. I., Vladimirova M., Cherbunin R. V., Sokolov P. S., Yakovlev D. R., Bayer M., Suter D., Kavokin K. V.* Spin-lattice relaxation of optically polarized nuclei in p-type GaAs// *Physical Review B* — 2018 — Vol.97 — P.165206.
74. *Kalevich V. K., Kul'kov V. D., and Fleisher V. G.*, Onset of a nuclear polarization front under optical spin orientation in a semiconductor// *JETP Lett.* — 1983 — Vol.35 — P.20.
75. *Sokolov P. S., Petrov M. Yu., Kavokin K. V., Kuznetsova M. S., Verbin S. Yu., Gerlovin I. Ya., Yakovlev D. R., and Bayer M.*, Subsecond nuclear spin dynamics in n-GaAs// *Phys. Rev. B* — 2019 — Vol.99 — P.075307.
76. *Burin A. L., Shklovskii B. I., Kozub V. I., Galperin Y. M., and Vinokur V.*, Many electron theory of 1/f noise in hopping conductivity// *Phys. Rev. B* — 2006 — Vol.74 — P.075205.
77. *Kavokin, K. V., Koudinov, A. V.* Dynamical polarization of nuclear spins by acceptor-bound holes in a zinc-blende semiconductor// *Phys. Rev. B* — 2013 — Vol.88 — P.235202.

78. *Korringa J.*, Nuclear magnetic relaxation and resonance line shift in metals//  
Physica (Amsterdam) — 1950 — V.16 — P.601.
79. *Wolf D.*, Spin Temperature and Nuclear Spin Relaxation in Matter: Basic  
Principles and Applications (Oxford University Press, Oxford, 1979).

## List of tables

<b>Table 1.1.</b> Gyromagnetic ratios for spins of electrons and nuclei in GaAs .....	135
<b>Table 6.1.</b> Parameters of the samples. Structure type: MC — microcavity, bulk — bulk epitaxial layer, DHS — double heterostructure, QW — quantum well. $d$ is the thickness of the layer. $n$ — concentration of resident electrons. $p$ is the concentration of resident holes. Research method: SN - spin noise, FR - Faraday rotation, PL - photoluminescence with dark intervals.....	203

## List of figures

<b>Figure 3.1</b> The Hanle curve and the dependence of its half-width on the pump intensity in a bulk sample of gallium arsenide with a donor concentration $n_D = 7 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ .....	155
--	-----

**Figure 3.2** Dependence of spin relaxation and correlation times on donor concentration in n-GaAs at low temperatures (2-6.5K). Symbols: experimental data, obtained by the author (empty circles ( $\tau_s$ ) and triangles ( $\tau_c$ )) and taken from literature. Lines: grey dotted – approximation of the measured dependence of the correlation time  $\tau_c$  on donor concentration; grey dashed – theoretical dependence of  $\tau_c$  in the model of exchange spin diffusion; orange solid -  $\tau_s$ , calculated from measured correlation time with account for relaxation by nuclei and anisotropic exchange; orange dotted – contribution of the hyperfine interaction ( $\tau_{SN}$ ); green solid – theoretical dependence, taking into account hyperfine and spin-orbit relaxation under exchange spin diffusion; green dotted – contribution of anisotropic exchange ( $\tau_{SA}$ ). Dark blue solid line shows theoretical dependence of the relaxation time by Dyakonov-Perel mechanism under scattering by charged impurities, with the prefactor of the relaxation time of 3-rd angular harmonic of the momentum distribution ( $\tau_3$ ) taken from comparison with  $\tau_3$ , experimentally measured in Ref.[43] for  $n_D = 3.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . Dark blue dashed – the same with

theoretical prefactor. Magenta line – Dyakonov-Perel mechanism with weak localization correction [43].....	157
<b>Figure 3.3</b> Dependences of the relaxation times of the first and third angular harmonics of the momentum distribution (a), their ratio (b) and mean free path (c) on the concentration of donors in a degenerate semiconductor.....	161
<b>Figure 3.4</b> Time dependence of the Faraday / Kerr rotation signals reflecting the spin dynamics of resident electrons after excitation by a short circularly polarized light pulse for various magnetic fields and donor concentrations. The experiments of VV Belykh from [44].....	170
<b>Figure 3.5</b> The dependence of times of longitudinal ( $T_1$ ) and transverse ( $T_2$ ) spin relaxation of electrons, as well as of their product, on magnetic field in lightly doped $n$ -GaAs. Experiments of V.V.Belykh [44].....	171
<b>Figure 4.1</b> Faraday rotation induced by Overhauser field in $n$ -GaAs. a) experimental design (description in the text). b) Faraday rotation angle as a function of time.....	177
<b>Figure 4.2</b> Nuclear magnetic resonance detected from Faraday rotation by an Overhauser field. a) the signal of the “slow” component of the Faraday rotation as a function of time. The red line shows the frequency of the alternating magnetic field. b) the same as a function of frequency. c) a scheme of the influence of an alternating field on the “fast” component. d) the amplitude of the “fast” component as a function of the frequency of the alternating field applied during pumping.....	178
<b>Figure 4.3</b> Relative intensities of optical transitions between valence band and conduction band (left) and between valence band and localized states occupied by an electron (right). .....	180
<b>Figure 4.4</b> Faraday rotation under reversal of the external field. The decaying signal is due to the Overhauser field. ....	180

**Figure 4.5.** aa) experimental design for measuring the Overhauser field from electron spin noise spectra. b) the evolution of the spectrum of spin noise over time: on the left, the Overhauser field is codirectional to the external field, and on the right, it is oppositely directed. c) resonance in the spectrum of electron spin noise.....182

**Figure 4.6** The experimental technique for the study of relaxation processes in a nuclear spin system by the luminescence method with dark intervals: a) setup scheme; b) experimental timing chart; c) Hanle curves in an oblique field when light is pumped by a variable and constant circular polarization. The dashed arrow indicates a change in the polarization of luminescence as the nuclear magnetization relaxes.....183

**Figure 5.1.** Change in the nuclear spin temperature  $\theta_N = (k_B\beta)^{-1}$  (dashed lines) and magnetization  $\langle M_B \rangle$  (solid lines) during adiabatic scanning of the magnetic field from the initial value  $B_i$  through zero, in accordance with Eqs. (5.10) and (5.11), neglecting spin-lattice relaxation ( $T_1 = \infty$ ). .....191

**Figure 5.2.** Scheme of an experiment on adiabatic magnetization reversal of a nuclear spin system. Above: electron spin noise spectroscopy. Below: non-resonant Faraday rotation.....192

**Figure 5.3.** Left: dependence of the Faraday rotation angle on the magnetic field when it is repeatedly scanned through zero. Straight lines - Faraday rotation, induced directly by an external field. In the middle: the contribution of nuclear magnetization to the Faraday rotation on sample A at a positive (below) and negative (above) spin temperature of the nuclei. Right: same on sample B.....193

**Figure 5.4.** Evolution of the spectra of electron spin noise (the frequency is plotted along the vertical axis, the spectral density of the noise power is shown in

color) when scanning the magnetic field for samples A (left), B (in the middle) and C (right). - nuclear spin temperature at  $B = 0$ .....195

**Figure 5.5.** The change in magnetization when passing through the mixing field (purple curve) and in the case  $B_{mix} > B_0$  (blue curve). Dashed line: dependence of  $M_{mix}$  on  $B_{mix}$  . .....198

**Figure 5.6.** Adiabatic magnetization reversal curve measured on sample A with preliminary exposure in the dark. The dashed line is fitting according to Eq. (5.11).....199

**Figure 5.7.** Transition frequencies between nuclear spin levels in gallium arsenide as a function of magnetic field. (a, c, e) - within the same nucleus, (b, d, f) - between different isotopes: (a, b) - in the absence of deformation, (c, d) the axis of deformation along the magnetic field, (e, f) Is the axis of deformation across the magnetic field. The colored bars below show the range of transitions allowed by energy conservation ( $\Delta\nu \leq 5/T_2$ ).....200

**Figure 6.1.** Time diagrams of experiments on the study of nuclear spin-lattice relaxation by (a) photoluminescence methods with dark intervals, (b) Faraday rotation and (c) spin noise. d) an example of the measured time dependence of the nuclear field and spin temperature (inset). In case (a), the nuclear field is measured in the field  $B_{pump}$  as a function of the duration of the previous dark interval (when the field is equal to  $B_{dark}$ ), in cases (b) and (c) - directly in the field  $B_{dark}$  . .....204

**Figure 6.2.** Dependence of  $1/T_1$  on the magnetic field for structures with n-type GaAs layers at a temperature of 4-5K. a) bulk layers; on the inset - in more detail for a range of 0-20G. b) microstructures (microcavities and double heterostructure). c) the half-width of the dependencies (fitting by Lorentzian on a constant background) as a function of donor concentration.....205

**Figure 6.3.** Temperature dependence of the relaxation rate in fields 150-1000G for samples A, D, E, F. ....206

**Figure 6.4.**  $T_1$  as a function of magnetic field (a) and temperature (b) in p-type GaAs (left axis, milliseconds) and p-type GaAs (right axis, seconds).....206

<b>Figure 6.5.</b> Dependence of the nuclear spin-lattice relaxation rate on the magnetic field for sample I (undoped quantum well 19.7 nm wide).....	207
<b>Figure 6.6.</b> The initial stage of spin-lattice relaxation in dielectric n-GaAs: relaxation of nuclear spins in contact with an electron localized on the donor [75].....	208
<b>Figure 6.7.</b> a) The transition from relaxation of the angular momentum to energy relaxation as the main component of the spin-lattice relaxation of nuclei with a decrease in the magnetic field to values comparable with the local fields of spin-spin interactions. b) The main mechanisms of spin-lattice relaxation in n-GaAs: diffusion-limited hyperfine relaxation at $B^2 \gg B_L^2$ and quadrupole warm-up in weak magnetic fields.....	213
<b>Figure 6.8.</b> Schemes of quadrupole relaxation in p-type (a) and n-type (b) GaAs .....	218