Федеральное государственное бюджетное
учреждение науки Физический институт
им. П. Н. Лебедева Российской академии наук

На правах рукописи

Белых Василий Валерьевич

Когерентная спектроскопия долгоживущей электронной спиновой динамики в твердотельных системах

1.3.8 – физика конденсированного состояния

Диссертация
на соискание ученой степени доктора
физико-математических наук

Москва – 2022

Оглавление

Введение **5**

1 Спиновая динамика: оптические методы и основные эффекты **19**

1.1 Введение 19

1.2 Электронный парамагнитный резонанс 20

1.3 Оптическая ориентация 21

1.4 Эффект Ханле 23

1.5 Динамика степени циркулярной поляризации фотолюминесценции 27

1.6 Метод накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения 30

1.7 Резонансное спиновое усиление 37

1.8 Метод спинового шума 39

1.9 Метод спиновой инерции 42

2 Проявления эффектов локализации в спиновой динамике электронов в объемном n-GaAs **46**

2.1 Введение 46

2.2 Расширенный метод накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения 51

2.3 Возникновение резонансного спинового усиления 53

2.4 Делокализация электронов при изменении температуры и концентрации доноров 55

2.5 Влияние слабой локализации на спиновую динамику электронов в объемном n-GaAs 68

2.6 Заключение по данной главе 76

3 Спиновая динамика в низкоразмерных системах на основе GaAs: режим квантового эффекта Холла в квантовых ямах и синхронизация спиновых

мод в квантовых точках **78**

3.1 Введение 78

3.2 Спиновая динамика высокоподвижного электронного газа в квантовых ямах . 81

3.3 Спиновая динамика электронов и дырок в квантовых точках на основе GaAs 87

3.4 Заключение по данной главе 95

4 Когерентная радиооптическая спектроскопия спиновой динамики **97**

4.1 Введение 97

4.2 Схема эксперимента 98

4.3 Радиооптический метод накачки–зондирования на примере n-GaAs 102

4.3.1 Скачкообразное изменение магнитного поля: T_1 и T_2^* 103

4.3.2 Спиновая динамика в осциллирующем РЧ поле: T_2 106

4.4 Увеличение сигнала с помощью дополнительной оптической подсветки 113

4.5 Заключение по данной главе 118

5 Комбинированный резонанс при оптическом и РЧ возбуждении спиновой системы, стимулированное резонансное спиновое усиление **119**

5.1 Введение 119

5.2 Экспериментальное наблюдение комбинированного РСУ–ЭПР резонанса в n-GaAs 121

5.3 Теория комбинированного РСУ–ЭПР резонанса в однородной системе 128

5.4 Комбинированный РСУ–ЭПР резонанс в неоднородной системе: стимулированное РСУ 132

5.5 Спиновая динамика электронов в Ce^{3+}:YAG 137

5.6 Стимулированное РСУ в Ce^{3+}:YAG: эксперимент 145

5.7 Теория стимулированного РСУ 153

5.8 Выводы по данной главе 156

6 Селективное определение времени продольной спиновой релаксации: Резонансная спиновая инерция **159**

6.1 Введение 159

6.2 Детектирование магнитного резонанса с помощью оптической накачки и измерения фарадеевского вращения 163

6.3 Обоснование метода резонансной спиновой инерции 165

6.3.1 Качественные соображения 165

6.3.2 Динамика спиновой поляризации под воздействием РЧ поля и непрерывной оптической накачки 167
6.3.3 Статические флуктуации ларморовской частоты 169
6.3.4 Флуктуации ларморовской частоты, меняющиеся во времени 173
6.3.5 Сравнение двух моделей 177
6.3.6 Сравнение с “классической” спиновой инерцией 178
6.4 Продольная спиновая релаксация в Ce^{3+}:YAG, анизотропия T_1 180
6.5 Заключение по данной главе 183

Заключение **185**

Список сокращений и обозначений **189**

Благодарности **191**

Публикации по теме диссертации в рецензируемых изданиях **192**

Публикации по теме диссертации в тезисах конференций **195**

Цитируемая литература **197**

Введение

Данная диссертация посвящена развитию экспериментальных методов исследования спиновой динамики электронов в твердотельных системах, а также явлениям, обнаруженным с помощью этих методов. Поясним более подробно в чем заключается суть решаемых проблем.

Спин $\mathbf{S}$ – это собственный момент импульса частицы, который измеряется в единицах приведенной постоянной планка $\hbar$. В данной диссертации мы будем в основном говорить о спине электрона в твердом теле, который в рассматриваемых системах равен $1/2$ и, согласно законам квантовой механики, его проекция на заданную ось может принимать значения $\pm 1/2$. Отметим, что для заряженной частицы, электрона, механический момент, спин, соответствует магнитному моменту $\boldsymbol{\mu} = -g\mu_{\mathrm{B}}\mathbf{S}$, где μ_{B} – постоянная, названная магнетоном Бора, а безразмерный g фактор определяет восприимчивость спина к магнитному полю. Для свободного электрона в вакууме, как известно, $g \approx 2.0023$ [1], тогда как для электрона в твердом теле g фактор может существенно отличаться от 2 и является характеристикой рассматриваемой системы.

Обычно исследование спина осуществляется в магнитном поле, которое воздействует на магнитный момент и приводит к расщеплению спиновых уровней, которое характеризуется

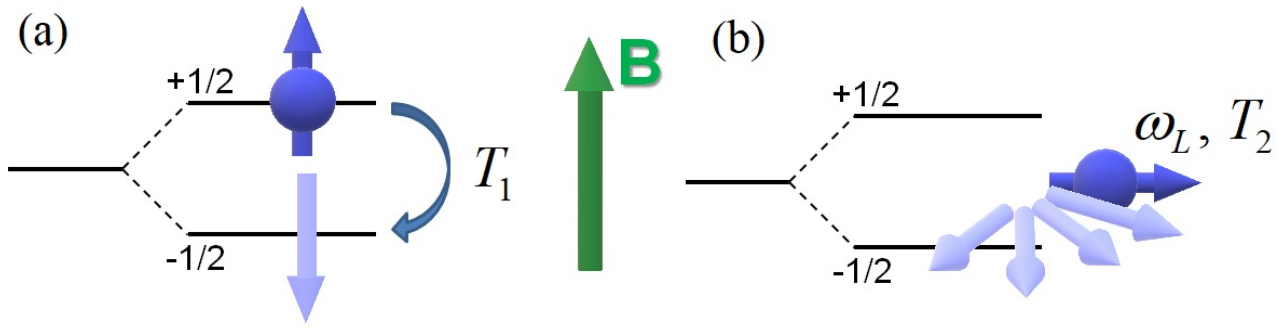


Рис. 1: Расщепление электронных спиновых уровней и динамика спина при его ориентации вдоль магнитного поля (a) и перпендикулярно полю (b).

энергией Зеемана

$$E_{\mathrm{Z}} = g\mu_{\mathrm{B}}B. \tag{1}$$

Характер динамики спина определяется его начальной ориентацией относительно поля. Так, если спин ориентирован параллельно полю [Рис. 1(a)], то он остается неподвижным пока некоторое возмущение не изменит его направление. Соответствующее время продольной спиновой релаксации обозначается T_1. Если же спин ориентирован перпендикулярно полю [Рис. 1(b)], то он находится в суперпозиции состояний, соответствующих зеемановским подуровням, и происходят квантовые биения между этими двумя состояниями. Здесь уместна механистическая аналогия электрона с классическим магнитным моментом в магнитном поле. Согласно этой аналогии, спин электрона совершает прецессию, названную в честь Лармора, вокруг магнитного поля $\mathbf{B}$ с частотой

$$\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}} = g\mu_{\mathrm{B}}\mathbf{B}/\hbar, \tag{2}$$

которая является одной из основных определяемых величин при исследовании спиновой динамики. На этой же частоте $\omega_{\mathrm{L}} = E_{\mathrm{Z}}/\hbar$ происходят квантовые биения между зеемановскими подуровнями. Ларморовская частота позволяет определить g фактор. Однако данная прецессия также имеет конечное время жизни, фаза этой прецессии сбивается в результате внешних воздействий. Соответствующее время называется временем спиновой когерентности и обозначается T_2.

Именно ω_{L}, T_1 и T_2 являются основными параметрами, которые измеряются при исследовании спиновой динамики. Их измерению посвящено множество исследований, идущих уже около столетия. И именно измерению этих параметров в различных твердотельных системах и при различных условиях посвящена данная диссертация.

Объясним какую цель преследуют при измерениях ω_{L}, T_1 и T_2. Как уже упоминалось, частота Лармора позволяет определить g фактор, который специфичен для данной системы и дает, в частности, информацию о ее зонной структуре [2]. Детектирование спиновых резонансов с определенными g факторами позволяет судить о наличии резидентных носителей заряда в системе [A6], то есть носителей, постоянно присутствующих в зоне проводимости. Также сверхтонкое взаимодействие электронных и ядерных спинов проявляется в изменении ω_{L}, которое можно детектировать и получать информацию о ядерной подсистеме [3, 4, A11, A10]. Время спиновой когерентности T_2 – наиболее важный параметр, когда идет речь о применении спина электрона в качестве квантового бита [5, 6]. Именно это время

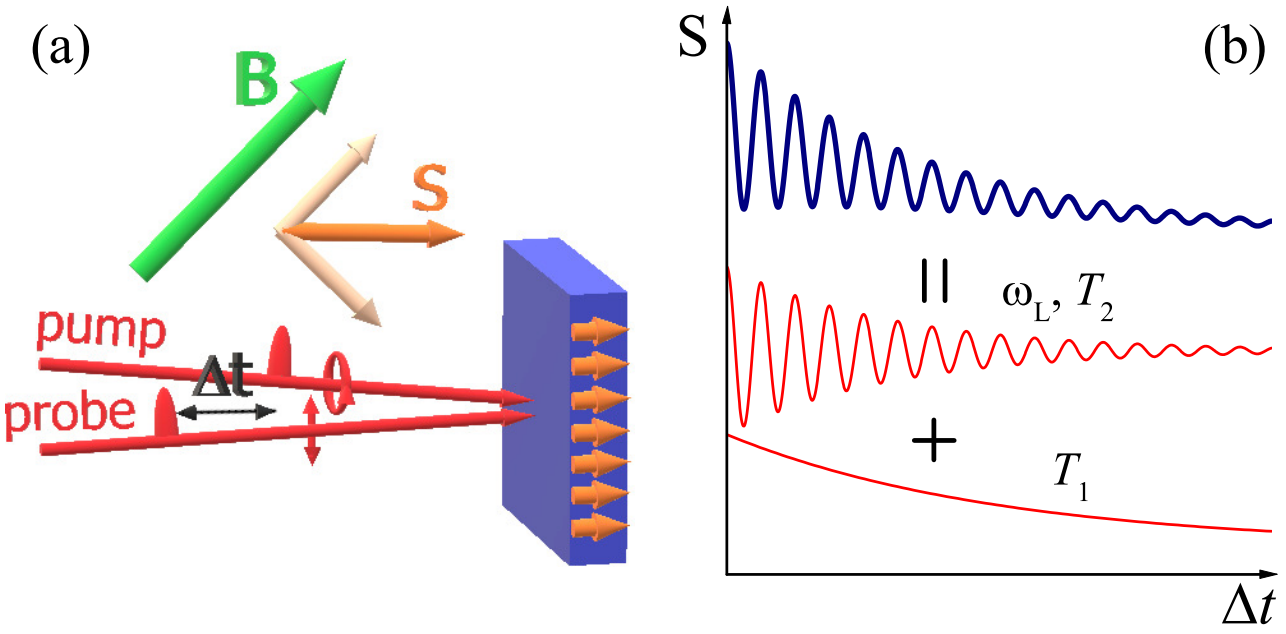


Рис. 2: (a) Эксперимент по исследованию спиновой динамики методом накачки–зондирования в наклонном магнитном поле. (b) Измеряемый сигнал, отражающий монотонное затухание спиновой компоненты вдоль магнитного поля и затухающую прецессию спиновой компоненты перпендикулярно полю.

определяет максимальное количество операций, которое можно совершить с таким битом. Отметим, что зачастую время T_2 в твердотельных системах относительно мало (нано- и микросекунды). Однако его можно увеличивать, отрывая спиновую подсистему от шумного окружения с помощью протоколов радиочастотного (РЧ) поля [7, A2]. При этом пределом для времени спиновой когерентности является время T_1 [8]. То есть именно время продольной спиновой релаксации T_1 характеризует принципиальную пригодность спиновой системы для практических применений, связанных с квантовыми вычислениями. Также зависимость времени T_1 от различных параметров, таких как температура и магнитное поле, позволяют получить информацию о механизмах спиновой релаксации и даже, подобно сопротивлению, о характере движения носителей заряда.

Казалось бы, лишь одно прямое измерение спиновой динамики в наклонном магнитном поле [Рис. 2(a)] позволит определить сразу ω_L, T_1 и T_2. Действительно, в подобном эксперименте компонента спина вдоль поля монотонно затухает со временем T_1, тогда как поперечная компонента прецессирует с частотой ω_L и затухает со временем T_2. Эти две компоненты легко наблюдать [Рис. 2(b)], измеряя динамку фарадеевского/керровского вращения методом накачки–зондирования, разработанным еще в начале 1990х годов [9, 10]. Однако трудно привести пример спиновой системы в которой подобное измерение даст достоверную информацию об этих трех ключевых параметрах при низких температурах. Исключение, пожалуй,

составляют магнитные системы, где имеет место сильная корреляция между магнитными моментами [11, 12, 13], и которые мы не будем рассматривать в рамках данной работы. Выделим проблемы определения параметров спиновой динамики, которые решаются в данной диссертации.

1. Измеренное в таком эксперименте время затухания спиновой прецессии во многих случаях (в системах с локализованными электронами) соответствует неоднородной дефазировке спинового ансамбля и определяется разбросом частот прецессии отдельных спинов. Это время обозначается T_2^* и гораздо короче реального времени спиновой когерентности T_2 отдельных спинов.

2. Во многих системах при низких температурах характерные времена спиновой релаксации T_1, T_2 и даже T_2^* длиннее, чем диапазон сканирования метода накачки–зондирования. Последний определяется длиной механической линии задержки и, как правило, составляет до 10 нс. Соответственно, эксперимент на Рис. 2(а) не позволит определить эти времена, и, кроме того, не позволит заметить тонкую структуру, которая иногда имеет место в частоте Лармора и проявляется в медленной модуляции спиновой динамики.

3. При наличии в системе нескольких спиновых мод, например, соответствующих электронам и дыркам, не представляется возможным приписать время T_1 определенной моде.

Для понимания фундаментальных задач, которые решались в данной диссертации, опишем исходный ландшафт знаний о спиновой релаксации, который имел место для полупроводников с отсутствующим центром инверсии, в которых спиновая релаксация движущихся электронов определяется спин-орбитальным взаимодействием при низких температурах. Самый распространенный класс таких систем, который и исследовался в диссертации, – это структуры на основе GaAs. Обзор обсуждаемых проблем спиновой физики удобно приводить пользуясь диаграммой, изображенной на Рис. 3. Здесь по горизонтальной оси отложено обратное время корреляции электрона τ_c. Это характерное время в течении которого электрон локализован в пределах боровского радиуса, например, на доноре в объемном полупроводнике. Таким образом, по горизонтальной оси отложена степень делокализации электрона, которую можно контролировать изменяя концентрацию доноров или температуру. Так большое $1/\tau_c$ соответствует свободным электронам, а $1/\tau_c = 0$ соответствует полностью локализованным электронам, например, в квантовых точках (КТ). По вертикальной оси отложено магнитное поле.

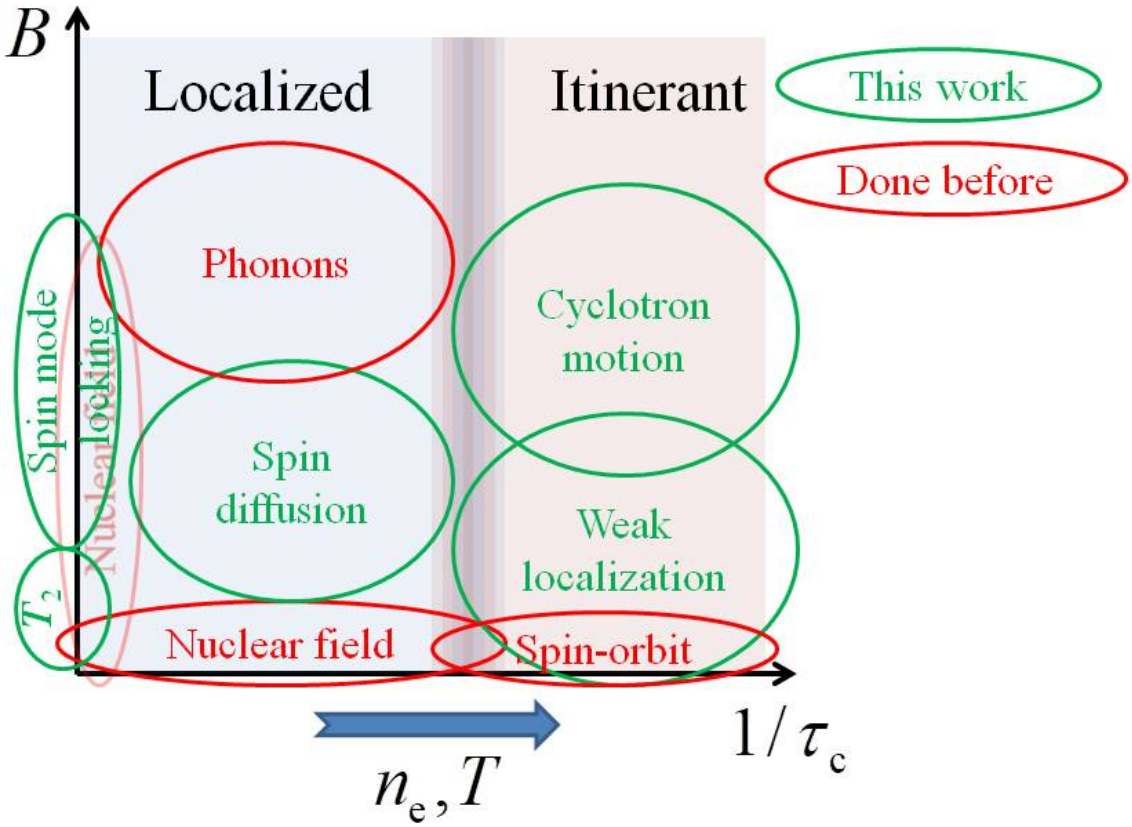


Рис. 3: Фазовая диаграмма, по горизонтальной оси которой отложено обратное время корреляции, то есть степень делокализации электронов, которую можно контролировать изменяя концентрацию носителей или температуру, а по вертикальной оси отложено магнитное поле. Различные участки этой фазовой диаграммы отвечают различным режимам спиновой релаксации. Участки, обведенные красной линией, изучались ранее, тогда как участки, обведенные зеленой линией, изучались в рамках работ, изложенных в данной диссертации.

Теоретически основные механизмы релаксации электронного спина в полупроводниках были выяснены еще в 1970-х [14]. При этом экспериментальные исследования в различных областях приведенной диаграммы были ограничены арсеналом имеющихся методов. Более подробный обзор этих методов будет приведен в следующей главе. Так, с использованием эффекта Ханле, была исследована спиновая релаксация электронов в нулевом магнитном поле при низкой температуре в широком диапазоне плотностей доноров до и после перехода металл–изолятор (область вдоль оси абсцисс на диаграмме) [15]. В частности, было показано, что для локализованных электронов время спиновой релаксации электронов определяется в основном сверхтонким взаимодействием со спинами ядер. При увеличении концентрации доноров большую роль приобретает анизотропное обменное взаимодействие между электронными спинами. В металлической фазе спиновая релаксация свободных электронов определяется спин-орбитальным взаимодействием, эффект которого ослабляется столкновениями электронов с донорами, так называемый механизм Дьяконова-Переля [16].

Исследования систем с низкой концентрацией доноров в магнитном поле проводились с использованием методов накачки–зондирования с анализом фотолюминесценции (ФЛ), позволивших получить информацию о времени продольной спиновой релаксации T_1 [17, 18, 19, 20]. Было показано, что продольное поле подавляет дефазировку, вызванную ядерными спинами, а в больших полях включаются механизмы спиновой релаксации, связанные с электрон-фононным взаимодействием (левый верхний участок диаграммы). Не совсем ясным оставался механизм спиновой релаксации в режиме промежуточных полей (левый нижний участок диаграммы). Наконец, не было подходящих методов для исследования продольной спиновой релаксации для систем с высокой концентрацией доноров, находящихся в металлической фазе, в магнитном поле (правая часть диаграммы).

Неплохо была изучена спиновая динамика в КТ с полностью локализованными электронами ($1/\tau_c = 0$, ось ординат на диаграмме). Здесь спин-орбитальное взаимодействие подавлено, а спиновая релаксация определяется сверхтонким взаимодействием со спинами ядер [21, 22], а в больших полях также фононами. Это же относится и к другим системам с полностью локализованными электронами, в частности, к редкоземельным ионам. Отметим, что эти системы в большом магнитном поле характеризуются длинным временем T_1 и коротким временем дефазировки спинового ансамбля $T_2^* \ll T_1$. При этом достаточно сложно определить истинное время спиновой когерентности T_2, которое может лежать в широком диапазоне $T_2^* < T_2 < 2T_1$. Однако в 2006 был открыт эффект синхронизации спиновых мод (spin mode locking) [23], который заключается в выделении определенных частот спиновой прецессии из широкого спектра, соответствующего ансамблю КТ, при его возбуждении периодическими

лазерными импульсами. Этот эффект позволяет измерить время T_2. Тем не менее не было экспериментальных исследований, позволяющих визуализировать модификацию спектра спиновой прецессии при периодическом возбуждении ансамбля КТ. Также данный эффект наблюдался лишь в некоторых системах и вопрос более универсального метода измерения времени T_2 оставался открытым. Здесь стоит отметить, что известный метод спинового эха [50], позволяющий измерить T_2 имеет ограничения по чувствительности и подходит далеко не для всех систем.

Отдельного упоминания заслуживают двумерные системы с квантовыми ямами (КЯ), содержащими резидентные электроны в зоне проводимости. В отличие от объемных систем, доноры, которые являются рассеивающими центрами для электронов, здесь находятся в барьерах. Таким образом, события рассеяния электронов относительно редки и спиновая релаксация за счет спин-орбитального взаимодействия очень эффективна. Следовательно в малых магнитных полях данные системы характеризуются быстрой спиновой релаксацией, которая может быть изучена обычным методом накачки–зондирования [9, 24, 25, 26, 27, 28, 29, 30, 31] или с помощью измерения динамики ФЛ с разрешением по поляризации [32, 33, 34, 35]. Интересный эффект был обнаружен в КЯ с высокоподвижным электронным газом высокой плотности в режиме квантового эффекта Холла (КЭХ): при нечетных факторах заполнения ν наблюдалось резонансное замедление дефазировки спиновой прецессии [36, 37, 38, 39, 40]. При этом динамика удлинялась так, что выходила далеко за диапазон сканирования обычного метода накачки–зондирования, так что вопрос определения реальной величины времени спиновой дефазировки в этом режиме оставался открытым. Кроме того, ожидалось резкое увеличение времени продольной спиновой релаксации T_1 в режиме КЭХ [41], которое требовало экспериментального изучения.

Таким образом, ограничения экспериментальных методов исследования спиновой динамики и связанные с этим открытые вопросы в исследовании электронных систем со свободными и локализованными электронами в магнитном поле при низких температурах определяют **актуальность** данной диссертации.

Целью работы является развитие методов спиновой физики, позволяющих измерять долгоживущую спиновую динамику с высоким временным разрешением, дающих доступ к исследованию спиновой когерентности присущей отдельным спинам, а также экспериментальное исследование с помощью данных методов класса систем на основе GaAs со свободными, слабо локализованными и полностью локализованными электронами, а также систем с полностью локализованными электронами в редкоземельных ионах. Для достижения данной цели решались следующие **задачи**:

1. Создание универсального метода, позволяющего измерять спиновую динамику электронного ансамбля в магнитном поле в широком временном диапазоне с высоким временным разрешением.

2. Исследование изменения спиновой динамики в магнитном поле при делокализации электронов в n-легированном GaAs.

3. Исследование особенностей спиновой релаксации в магнитном поле в n-GaAs, находящемся в металлической фазе.

4. Исследование продольной спиновой релаксации высокоподвижного электронного газа в квантовых ямах в магнитном поле.

5. Прямое наблюдение эффекта синхронизации спиновых мод в спектре спиновой прецессии ансамбля квантовых точек после их периодического оптического возбуждения.

6. Создание методов измерения и контроля времени спиновой когерентности T_2 в системах с локализованными электронами.

7. Создание селективного метода измерения времени продольной спиновой релаксации, позволяющего поставить в соответствие g фактору время T_1.

Научная новизна. Все результаты, представленные в данной диссертации, за исключением обзорной главы 1, являются оригинальными. Новизна большинства полученных результатов основывается на разработанном автором расширенном методе накачки–зондирования, позволяющем исследовать в деталях с большим временным разрешением долгоживущую спиновую динамику в широком временном диапазоне. Данные измерения ранее были недоступны стандартным методом накачки–зондирования. Это позволило радикально расширить область исследуемых режимов по магнитному полю, степени локализации электронов и обнаружить новые явления, связанные с особенностями спиновой релаксации. Также автором были разработаны оригинальные радиооптические методы измерения времени спиновой когерентности для спинов, свободных от влияния шумного окружения, и селективного измерения времени продольной спиновой релаксации.

Теоретическая и практическая значимость работы. Расширенный метод накачки–зондирования для исследования спиновой динамики, представленный в данной диссертации, позволил наблюдать новые эффекты в хорошо исследованных, а также новых системах. Это радикальное изменение характера спиновой релаксации при делокализации электронов

[A12], большая роль спиновой диффузии в системах со слабо локализованными электронами, которая ранее обсуждалась лишь теоретически [42]. Обнаружение проявлений чисто транспортного явления слабой локализации в спиновой релаксации [A8], которое позволило подтвердить теоретические предсказания [43, 44]. Обнаружение предсказанного теоретически [41] резкого замедления продольной спиновой релаксации в режиме квантового эффекта Холла [A5]. Проверка ряда теорий спиновой синхронизации мод ансамбля квантовых точек после периодического лазерного возбуждения прямыми экспериментальными наблюдениями [A11, A10, 45]. Расширенный метод накачки–зондирования также использовался для изучения систем на основе CdTe [46] и перовскитов [4]. Перечисленные результаты получены при гелиевых температурах, когда время спиновой релаксации характеризуется временным диапазоном от десятков наносекунд до миллисекунд, при этом период спиновой прецессии в магнитном поле может лежать в пикосекундном диапазоне.

Понимание механизмов спиновой релаксации, которые исследовались в данной работе, важно и с практической стороны при рассмотрении спина локализованного электрона в качестве квантового бита. Здесь решающую роль играет время спиновой когерентности T_2, измерение которого, как уже было упомянуто, весьма нетривиально. Для определения времени T_2 был разработан радиооптический метод накачки–зондирования [A7, A4], а также метод стимулированного резонансного спинового усиления [A2], основанный на эффекте комбинированного радиооптического резонанса [A3]. Метод стимулированного резонансного спинового усиления также позволил увеличить T_2, отрывая электронную спиновую систему от ядерной спиновой системы.

В данной диссертации также была решена проблема селективного определения времени продольной спиновой релаксации T_1. Был разработан радиооптический метод резонансной спиновой инерции, обладающий высокой чувствительностью, который, в частности, позволил измерить анизотропию времени T_1 в Ce^{3+}:YAG [A1]. Этот метод будет полезен для определения T_1 в системах, характеризующихся несколькими спиновыми резонансами.

Методология и методы исследования. Подавляющая часть результатов данной диссертации была получена с помощью оригинальных методов: расширенного метода накачки–зондирования с измерением фарадеевского вращения, радиооптического метода накачки–зондирования, метода стимулированного резонансного спинового усиления и метода резонансной спиновой инерции. Данные методы описаны в соответствующих главах диссертации. Общим для всех измерений являлось то, что они проводились при низких температурах от 1.6 до 40 K с использованием гелиевых криостатов, в том числе со сверхпроводящими магнитами. Также во всех экспериментах по исследованию спиновой динамики измерялось фара-

деевское (керровское) вращение плоскости поляризации лазерного луча, прошедшего через образец (отраженного от образца).

Положения, выносимые на защиту.

1. Разработан расширенный метод накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения, позволяющий регистрировать спиновую динамику в широком временном диапазоне с пикосекундным разрешением.

2. Времена продольной спиновой релаксации и дефазировки спинового ансамбля в n-легированном GaAs с плотностью доноров ниже пороговой плотности перехода металл–изолятор связаны обратным соотношением $T_1 T_2^* \approx const$, которое выполняется при изменении магнитного поля и температуры.

3. Спиновая динамика в n-GaAs в магнитном поле претерпевает радикальное изменение при делокализации электронов за счет увеличения концентрации доноров или при увеличении температуры. Спиновая система преимущественно локализованных электронов характеризуется большой неоднородностью частот ларморовской прецессии, коротким временем дефазировки спинового ансамбля T_2^* и длинным временем $T_1 \gg T_2^*$. Для делокализованных электронов разброс частот прецессии минимален, и система характеризуется близкими и не очень длинными временами $T_1 \sim T_2^*$.

4. В n-GaAs, находящемся в металлической фазе вблизи перехода металл–изолятор, спиновая релаксация подвержена влиянию эффекта слабой локализации, который проявляется в увеличении времени продольной спиновой релаксации T_1 на несколько десятков процентов. Этот эффект разрушается при увеличении магнитного поля или температуры.

5. В квантовой яме на основе GaAs с высокоподвижным электронным газом в режиме квантового эффекта Холла продольная спиновая релаксация испытывает резонансное замедление на четных факторах заполнения ν. В частности, при $\nu = 2$ время T_1 достигает субмикросекундных значений.

6. Спектр свободной спиновой прецессии ансамбля однократно заряженных (In,Ga)As/GaAs квантовых точек после периодического импульсного лазерного возбуждения характеризуется модовой структурой, причем ширина мод сравнима с межмодовым расстоянием. Динамическая поляризация спинов ядер радикально ускоряет формирование модовой структуры.

7. Разработан радиооптический метод накачки–зондирования, в котором спиновая ориентация осуществляется импульсом радиочастотного поля, а детектирование спиновой динамики – оптическим импульсом. Данный метод позволяет определять частоту спиновой прецессии и времена спиновой релаксации.

8. Периодическое оптическое возбуждение спиновой системы может существенно усиливать электронный парамагнитный резонанс, когда частота РЧ поля совпадает с частотой следования лазерных импульсов и частотой спиновой прецессии, то есть в условиях комбинированного резонанса.

9. При периодическом оптическом возбуждении неоднородной спиновой системы и приложении РЧ поля в условиях комбинированного резонанса возникает эффект стимулированного резонансного спинового усиления. Данный эффект позволяет определить время спиновой когерентности T_2, свободное от влияния шумного окружения. При изменении частоты РЧ поля относительно частоты следования лазерных импульсов для системы ионов церия в решетке аллюмо-иттриевого граната, Ce^{3+}:YAG, наблюдается спиновый резонанс шириной в несколько десятков–сотен герц, соответствующий миллисекундному времени спиновой когерентности.

10. Разработан метод резонансной спиновой инерции, позволяющий определить время продольной спиновой релаксации T_1 и поставить его в соответствие конкретному g фактору. С его помощью, в частности, была обнаружена сильная анизотропия времени T_1 в Ce^{3+}:YAG. Метод основан на оптической ориентации и оптическом детектировании спиновой поляризации и воздействии на нее резонансным РЧ полем, промодулированным по амплитуде.

Достоверность полученных результатов. Достоверность результатов, полученных в диссертации с помощью оригинальных методов, подтверждается их сравнением с известными результатами, полученными классическими методами в ограниченном возможностями этих методов диапазоне параметров, например, с временами спиновой релаксации в нулевом поле, измеренными с помощью эффекта Ханле. Часть результатов, относящихся к слабой локализации, проверялась сопоставлением результатов оптических измерений спиновой динамики и транспортных измерений. Адекватность новых методов, представленных в данной диссертации, проверялась их применением к системам с известными параметрами спиновой динамики, измеренными другими методами. Также достоверность всех представленных

экспериментальных результатов подтверждается их сопоставлением с теоретическими расчетами.

Апробация работы. Результаты данной диссертации докладывались на ведущих тематических конференциях: 33rd International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2016, Пекин), 34th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2018, Монпелье, Франция), Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (NOEKS13 2016, Дортмунд, Германия), 9th International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Solids (PASPS 2016, Кобе, Япония), XIII Российская конференция по физике полупроводников (Полупроводники-2017, Екатеринбург), XIV Российская конференция по физике полупроводников (Полупроводники-2019, Новосибирск), E. F. Gross-Symposium: Excitons in Crystals and Nanostructures (2017, Санкт-Петербург), 50 Years of Optical Orientation in Semiconductors (2018, Париж), V Conference on Quantum Technologies (ICQT 2019, Москва), 28th International Symposium on Nanostructures: Physics and Technology (2020, Минск), XII Международный симпозиум по фотонному эхо и когерентной спектроскопии (ФЭКС 2021, Казань), XXVI международный симпозиум «Нанофизика и наноэлектроника» (2022, Нижний Новгород). Также результаты диссертации неоднократно докладывались на семинарах TU Dortmund, ФИАН, низкоразмерном семинаре в ФТИ им. Иоффе, семинаре SOLAB в СПбГУ.

Публикации. Основные результаты диссертации опубликованы в 17-ти статьях [А1-А17] в научных рецензируемых журналах, индексируемых базой данных Web of Science и в 11-ти тезисах конференций [Б1-Б11].

Личный вклад автора в данной работе заключался в постановке задач, а также в ведущей роли в создании и/или модификации экспериментальных установок, проведении экспериментов, интерпретации результатов, а в части работ также в теоретическом описании экспериментальных результатов. Представление в данной работе экспериментальных результатов, не полученных автором лично или при его активном участии, сопровождается указанием их авторства. Также в явном виде в диссертации указан вклад теоретиков.

Содержание работы. Диссертация состоит из настоящего *введения*, шести глав и *заключения*.

В *главе 1* приведен обзор основных эффектов, относящиеся к спиновой физике в твердотельных системах и классических оптических методов исследования спиновой динамики, на базе которых построены оригинальные методы, представленные в дальнейших главах диссертации. В этой главе также представлены некоторые оригинальные результаты, относящиеся к спиновой динамике CdZnTe и учету фазы в методе спиновой инерции.

Оригинальное содержание диссертации условно можно разделить на две части. В первой части, это главы 2-3, представлены результаты, полученные с помощью чисто оптического расширенного метода накачки–зондирования в системах на основе n-легированного GaAs. В *главе 2* в деталях представлен сам расширенный метод накачки–зондирования и обсуждается изменение спиновой динамики в объемном n-GaAs при делокализации электронов, в том числе при переходе металл–изолятор. В частности, обсуждается связь между неоднородной дефазировкой и продольной спиновой релаксацией в фазе изолятора, а также обнаружение эффекта слабой локализации в спиновой динамике электронного газа в металлической фазе. *Глава 3* посвящена исследованию долгоживущей спиновой динамики в низкоразмерных системах на основе GaAs. В первой части главы приведены исследования высокоподвижного электронного газа в КЯ в режиме квантового эффекта Холла. Далее описано исследование синхронизации спиновых мод в ансамбле КТ на основе расширенного метода накачки–зондирования при периодическом возбуждении ансамбля лазерными импульсами.

Во второй части диссертации, это главы 4-6, описаны методы, основанные на управлении и детектировании спиновых состояний оптическим излучением и РЧ полем. В *главе 4* представлен гибридный радиооптический метод накачки–зондирования, где накачка осуществляется либо цугом РЧ поля, либо одномоментным изменением магнитного поля, а зондирование осуществляется оптическим импульсом. Данный метод продемонстрирован на примере объемного n-GaAs. Он позволяет определять частоту ларморовской прецессии, а также времена T_1, T_2 и T_2^*. Также в данной главе приведены основы теоретического описания электронной спиновой динамики в постоянном и осциллирующем магнитных полях. *Глава 5* посвящена комбинированному резонансу, возникающему при совпадении частот ларморовской прецессии спина, РЧ поля, действию которого подвержена система, а также частоты повторения лазерных импульсов, возбуждающих систему. Комбинированный резонанс вначале в подробностях исследован в однородной системе n-GaAs с $T_2^* = T_2$. Затем рассмотрен комбинированный резонанс в неоднородной системе с локализованными электронами в редкоземельных ионах церия Ce^{3+} в решетке иттрий-алюминиевого граната YAG, где $T_2^* \ll T_2$. Показано, что РЧ поле стимулирует оптическое спиновое усиление и приводит к резонансу, ширина которого определяется временем когерентности T_2, свободным от влияния неоднородного окружения, и составляет десятки и сотни герц. При этом ширина обычного спинового резонанса определяется разбросом ларморовских частот и в исследуемой системе на 5 порядков больше. *Глава 6* посвящена селективному методу определения времени продольной спиновой релаксации T_1, которое можно сопоставить конкретному g фактору. Метод основан на оптической спиновой ориентации и периодической деполяризации спиновой системы

резонансным РЧ полем. Время T_1 определяется как мера инерции модуляции спиновой поляризации, вызванной модуляцией РЧ поля. Данный метод продемонстрирован на системе Ce^{3+}:YAG, в которой он позволил обнаружить сильную анизотропию времени T_1.

Глава 1

Спиновая динамика: оптические методы и основные эффекты

1.1 Введение

Существует большое число методов измерения электронной спиновой динамики. Эти методы можно условно разделить на методы с использованием РЧ поля, частота которого подстраивается в резонанс с частотой Лармора, и оптические методы, где ориентация и детектирование спина осуществляется с помощью света, резонансного с энергией межзонного перехода. Здесь мы будем использовать термин “РЧ поле” весьма условно, подразумевая излучение не только в РЧ, но и в микроволновом диапазоне. Первый класс методов основан на эффекте электронного парамагнитного резонанса (ЭПР), тогда как второй класс методов основан на эффекте оптической ориентации. Эти методы можно комбинировать, управляя спином с помощью РЧ поля и детектируя его оптически, таким образом получается оптически-детектируемый магнитный резонанс (ОДМР).

В этой главе мы опишем суть эффектов ЭПР и оптической ориентации, а также приведем краткий обзор эффектов и классических оптических методов исследования спиновой динамики электронов в твердотельных системах. Это:

- эффект Ханле,
- динамика степени циркулярной поляризации фотолюминесценции,
- метод накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения,
- резонансное спиновое усиление,

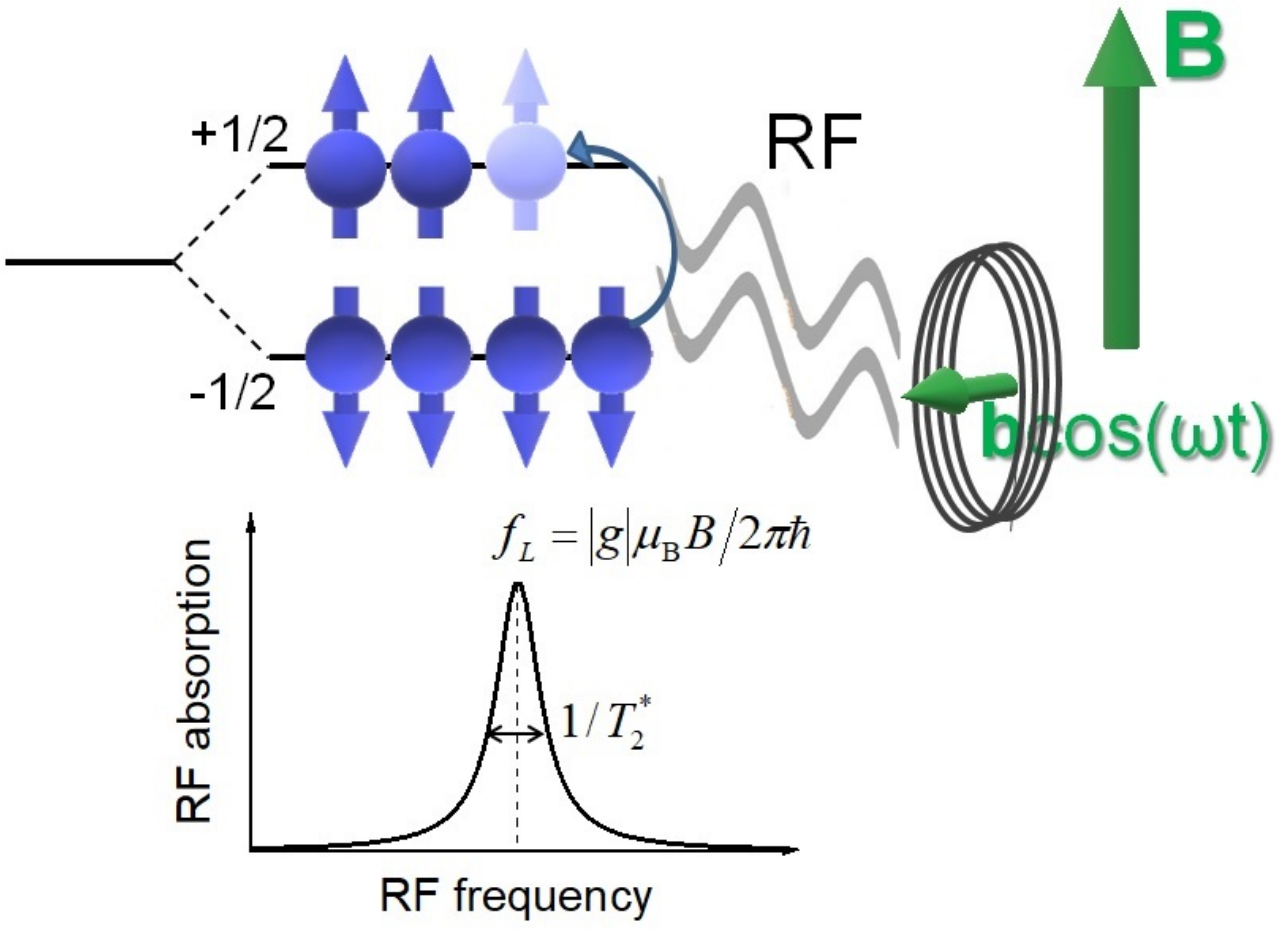


Рис. 1.1: Иллюстрация эффекта ЭПР.

- метод спинового шума,
- метод спиновой инерции.

1.2 Электронный парамагнитный резонанс

Эффект ЭПР был открыт Е. К. Завойским в 1944 году в Казани [47, 48]. В магнитном поле происходит зеемановское расщепление спиновых уровней. В ансамбле электронов преимущественно заселяется нижний спиновый подуровень, так что отношение заселенности на верхнем и нижнем уровнях определяется распределением Больцмана $\exp(-E_Z/k_BT)$ (в общем случае распределением Ферми-Дирака). При приложении РЧ поля резонансного со спиновым расщеплением, оно стимулирует переходы между спиновыми уровнями: с нижнего на верхний и наоборот. Однако вследствие того, что на нижнем спиновом уровне несколько больше электронов, переходы происходят преимущественно с нижнего на верхний уровень, сопровождаясь поглощением РЧ поля (Рис. 1.1). Таким образом, если измерять поглощение

РЧ поля в зависимости от его частоты, то мы зарегистрируем электронный парамагнитный резонанс (нижняя панель на Рис. 1.1). В реальных экспериментах в основном частота РЧ поля является фиксированной, а изменяется магнитное поле. Более того, для улучшения точности экспериментов магнитное поле слегка модулируется и измеряется первая производная от кривой ЭПР резонанса.

ЭПР служит отправной точкой для многих методов исследования спиновых свойств различных материалов. Например, импульсный ЭПР [49] помимо g фактора позволяет определить времена T_1 и T_2. При этом для определения T_2 используется принцип спинового эха [50], к рассказу о котором мы вернемся в следующих разделах при описании неоднородного времени спиновой дефазировки T_2^*. Основным достоинством данного класса методов служит их универсальность – они работают для большого числа систем и позволяют определить практически все спиновые параметры. К недостаткам этих методов стоит отнести их низкую чувствительность: они предполагают работу с макроскопическим объемным образцом. Также сигнал ЭПР пропорционален разности населенностей зеемановских уровней. Сигнал становится значительным лишь в больших магнитных полях и при низких температурах. Эти проблемы частично решаются оптически-детектируемым магнитным резонансом (ОДМР) [51, 52, 53], где детектирование осуществляется оптически в основном измерением фотолюминесценции (ФЛ). ОДМР обладает непревзойденной чувствительностью, позволяя измерять спиновый резонанс от одиночных объектов [7, 54]. Другой проблемой как ЭПР, так и ОДМР является ограниченный диапазон магнитных полей, который определяется, как правило, фиксированной частотой РЧ поля.

1.3 Оптическая ориентация

Оптические методы исследования спиновой динамики основаны на принципе оптической ориентации. Оптическая ориентация заключается в передаче спина фотона электрону, в частности, в ориентации спинов электронов циркулярно поляризованным светом [55]. Впервые этот принцип был реализован в атомных газах [56, 57, 58, 59, 60], положив начало направлению исследований, названному оптической накачкой [60]. В полупроводниках оптическая ориентация была обнаружена Лампелем [61]. В полупроводнике циркулярно поляризованный свет рождает электронно-дырочную пару с определенными ориентациями спинов, зависящими от направления поляризации света (Рис. 1.2). Здесь стоит отметить, что свет напрямую не взаимодействует с электронным спином. Однако свет взаимодействует с орбитальным движением электрона, а орбитальное движение влияет на спин (спин-орбитальное взаимодействие).

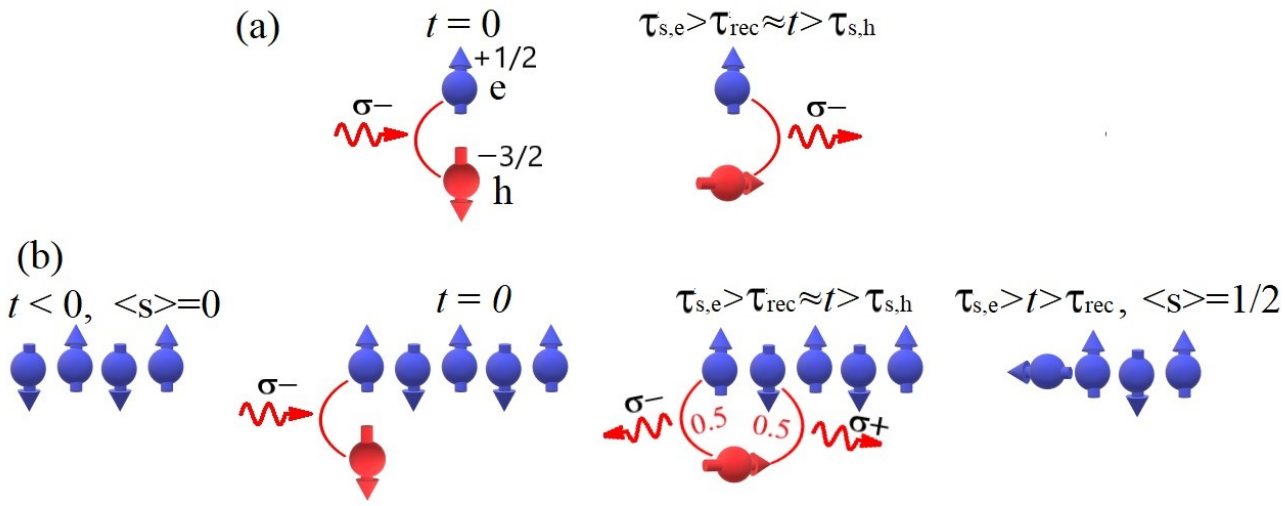


Рис. 1.2: Иллюстрация оптической ориентации на примере возбуждения электрона и тяжелой дырки в GaAs. (a) Случай собственного полупроводника. (b) Ориентация спинов резидентных электронов.

Кроме того, в твердом теле под спином подразумевается полный момент электрона, который может включать в себя также орбитальную составляющую. Таким образом, оптическая ориентация осуществляется через спин-орбитальное взаимодействие. В случае собственного полупроводника с низкой концентрацией резидентных носителей заряда в зоне проводимости, процесс спиновой релаксации может происходить лишь в течение времени жизни фотовозбужденных электрона и дырки, то есть времени рекомбинации [Рис. 1.2(a)]. Так, если время жизни спина одного из носителей заряда (электрона) больше времени рекомбинации и к системе не приложено магнитное поле, то излучение будет так же циркулярно поляризовано, как и возбуждающий свет. Если в системе имеются резидентные носители заряда (например, электроны), то их ориентация происходит как показано на Рис. 1.2(b). В результате оптического возбуждения с циркулярной поляризацией, рождаются спин-поляризованные электрон и дырка. Далее, если время спиновой релаксации, например, дырки меньше времени рекомбинации носителей, либо к системе приложено магнитное поле, то спин дырки меняется относительно спина электрона. В результате она может рекомбинировать как с электроном имеющим спин вверх, так и спин вниз. Как следствие такого процесса спин резидентных электронов после рекомбинации электрона и дырки увеличится на 1/2. Таким образом, циркулярно поляризованный свет может как создавать спин-поляризованные носители, так и передавать спиновую поляризацию резидентным носителям.

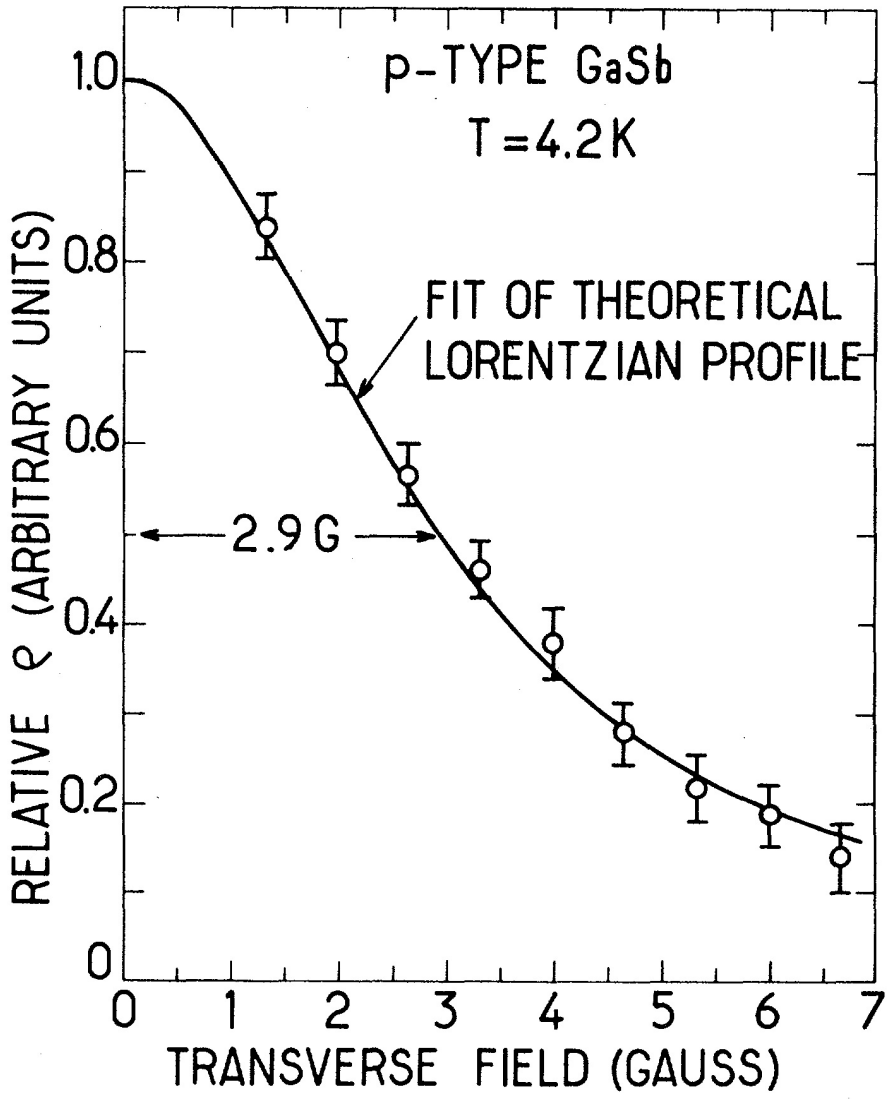


Рис. 1.3: Зависимость нормированной степени циркулярной поляризации от величины поперечного магнитного поля (кривая Ханле). Взято из [62].

1.4 Эффект Ханле

Из рассуждений, приведенных в предыдущем разделе, следует, что при оптической ориентации циркулярно поляризованным светом, если время спиновой релаксации хотя бы одного из типов носителей в полупроводнике больше или сравнимо со временем рекомбинации, то ФЛ будет также циркулярно поляризована, как и возбуждение. Эффект, который был обнаружен Ханле в 1924 году в газах [63] и Парсонсом в полупроводниках [62] заключается в подавлении циркулярной поляризации ФЛ поперечным магнитным полем (Рис. 1.3). Действительно, магнитное поле вызывает прецессию спина с частотой $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}} = g\mu_{\mathrm{B}}\mathbf{B}/\hbar$. Если период спиновой прецессии меньше времени жизни спина, то направление спина меняется полем, и поляризация ФЛ оказывается подавленной. Поясним это на примере собственно-

го полупроводника у которого время спиновой релаксации дырки много меньше времени рекомбинации, и поляризация ФЛ определяется временем спиновой релаксации электрона. Мы можем записать уравнения Блоха [64], описывающее движение спина электрона как магнитного момента в магнитном поле (первый член в левой части) и учитывающее спиновую релаксацию (второй член), рекомбинацию (третий член) и накачку (четвертый член):

$$\frac{d\mathbf{S}}{dt} = \boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}} \times \mathbf{S} - \frac{\mathbf{S}}{\tau_{\mathrm{s}}} - \frac{\mathbf{S}}{\tau_{\mathrm{rec}}} + \mathbf{P}, \tag{1.1}$$

здесь τ_{s} – время спиновой релаксации, τ_{rec} – время рекомбинации, $\mathbf{P}$ – вектор, описывающий спиновую накачку. Проекция спина вдоль вектора $\mathbf{P}$ (мы предполагаем, что он направлен вдоль оси z), соответствующая стационарному решению данного уравнения:

$$S_z = \frac{P\tilde{\tau}_{\mathrm{s}}}{1 + (\tilde{\tau}_{\mathrm{s}}\omega_{\mathrm{L}})^2}, \tag{1.2}$$

где $1/\tilde{\tau}_{\mathrm{s}} = 1/\tau_{\mathrm{s}} + 1/\tau_{\mathrm{rec}}$. Степень циркулярной поляризации ФЛ (degree of circular polarization, DCP) можно определить, разделив уравнение (1.2) на S_z при $\omega_{\mathrm{L}} = 0$ и $1/\tau_{\mathrm{s}} = 0$:

$$\mathrm{DCP} = \frac{\tilde{\tau}_{\mathrm{s}}/\tau_{\mathrm{rec}}}{1 + (\tilde{\tau}_{\mathrm{s}}\omega_{\mathrm{L}})^2}. \tag{1.3}$$

Таким образом, измеряя степень циркулярной поляризации при $\omega_{\mathrm{L}} = 0$, а также ширину зависимости DCP от ω_{L} или магнитного поля (Рис. 1.3) можно определить времена τ_{rec} и τ_{s}.

Данный метод достаточно прост в реализации, и именно с его помощью проведены многие классические исследования спиновой релаксации [15, 65, 66, 67, 68, 69, 70, 71, 72, 73, 74, 75]. В частности, было исследовано взаимодействие электронных и ядерных спинов [66], влияние электрического поля на оптическую ориентацию [69], спиновая релаксация в объемном n-GaAs [15, 71, 72, 75] и p-GaAs [65], спиновая релаксация в квантовых ямах [73, 74], спин-зависимая рекомбинация [68], динамическое усреднение в результате обменного взаимодействия [67]. Эффект Ханле можно наблюдать не только измеряя степень циркулярной поляризации ФЛ, но также любыми другими методами, позволяющими детектировать спиновую поляризацию в системе, например, с помощью фарадеевского/керровского вращения. Отметим, что, тем не менее, эффект Ханле позволяет определять время спиновой релаксации лишь в нулевом магнитном поле.

Итак, поперечное магнитное подавляет спиновую поляризацию. Возникает вопрос: Как на поляризацию влияет продольное магнитное поле? Ответ на этот вопрос зависит от конкретного механизма спиновой релаксации, и в подавляющем большинстве случаев продоль-

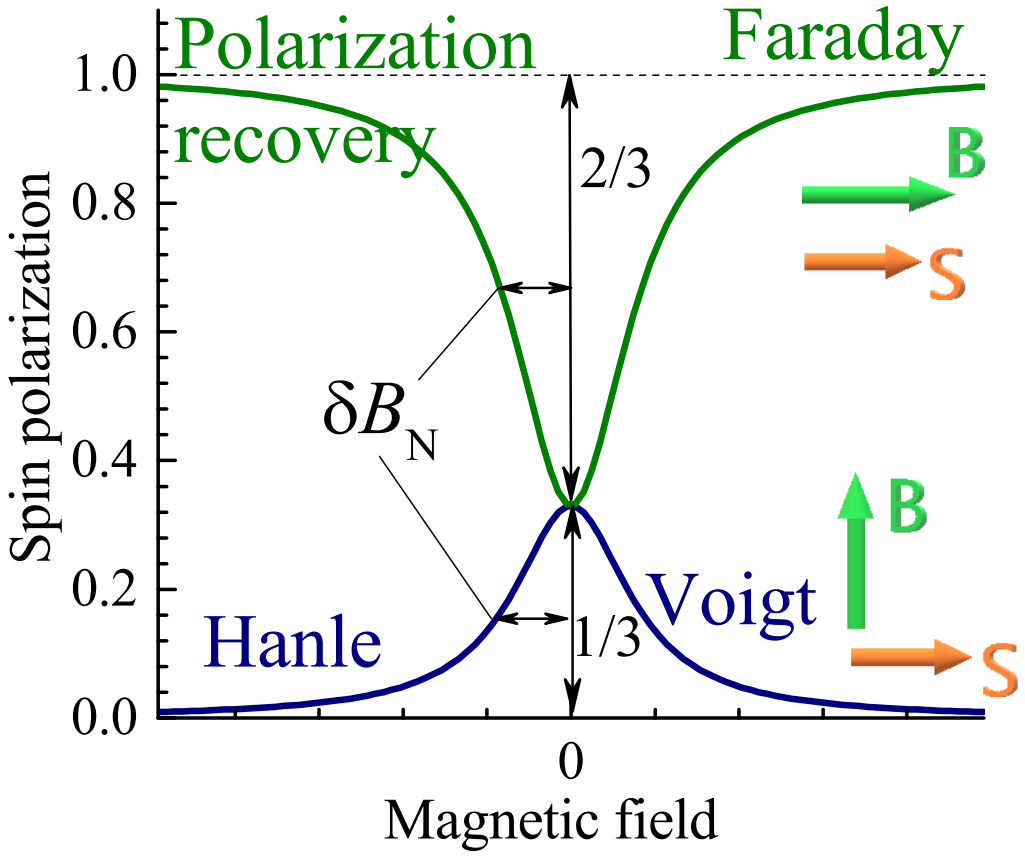


Рис. 1.4: Зависимости спиновой поляризации от магнитного поля, приложенного в геометрии Фогта (синяя кривая) и в геометрии Фарадея (зеленая кривая), так называемые кривая Ханле и кривая восстановления поляризации, соответственно.

ное поле стабилизирует спин, увеличивая спиновую поляризацию. Одно из исключений из этого правила мы рассмотрим в разделе 2.5 – это системы в которых слабая локализация электронов существенно влияет на спиновую релаксацию. Здесь же мы рассмотрим важный пример системы, состоящей из ансамбля квантовых точек, имеющих резидентные электроны (для дырок рассуждения аналогичны). Спиновая релаксация ансамбля КТ при оптической ориентации определяется сверхтонким взаимодействием электронных и ядерных спинов. Это взаимодействие можно описать эффективным полем Оверхаузера $\mathbf{B}_\mathrm{N}$, действующим на электронный спин со стороны ядер [76]. Это поле в каждой отдельной КТ имеет произвольную ориентацию и в среднем по ансамблю равно нулю. При этом в отсутствии внешнего магнитного поля, оптически-ориентированный спин электрона в КТ сохраняет свою компоненту вдоль направления ядерного поля, тогда как перпендикулярная компонента прецессирует вокруг $\mathbf{B}_\mathrm{N}$ и обращается в ноль при усреднении по ансамблю КТ. Усреднение показывает, что средняя спиновая поляризация составляет 1/3 от созданной изначально поляризации именно за счет компоненты параллельной $\mathbf{B}_\mathrm{N}$ [21].

Приложение поперечного магнитного поля $\mathbf{B}$ в геометрии Фогта, перпендикулярно созданной спиновой поляризации, увеличивает вклад прецессирующей спиновой компоненты перпендикулярной результирующему магнитному полю $\mathbf{B}+\mathbf{B}_\mathrm{N}$ и уменьшает среднюю поляризацию. В результате зависимость спиновой поляризации от поперечного магнитного поля имеет вид кривой Ханле (синяя кривая на Рис. 1.4) с полушириной равной характерному масштабу ядерных полей δB_N в КТ.

При приложении продольного магнитного поля в геометрии Фарадея, параллельно созданной спиновой поляризации, увеличивается компонента оптически ориентированной спиновой поляризации на направление поля $\mathbf{B}+\mathbf{B}_\mathrm{N}$, приводя к увеличению средней поляризации вплоть до значений, соответствующих изначально созданной поляризации. Зависимость спиновой поляризации от продольного магнитного поля (зеленая кривая на Рис. 1.4) называется кривой восстановления поляризации (polarization recovery curve, PRC).

Отношение пика кривой Ханле и провала кривой восстановления поляризации для замороженной ядерной системы равно 1/2 [21]. Для систем с частично подвижными электронами и при учете меняющегося во времени ядерного поля данное отношение уменьшается, позволяя оценить соответствующее время корреляции [77]. Измерение кривой восстановления поляризации является хорошим инструментом определения разброса ядерных полей δB_N в системе. Отметим, что при оптической спиновой ориентации резидентных носителей заряда в системе КТ первый этап спиновой релаксации в нулевом поле (до значения 1/3 от исходной поляризации) происходит за время, определяемое шириной кривых на Рис. 1.4,

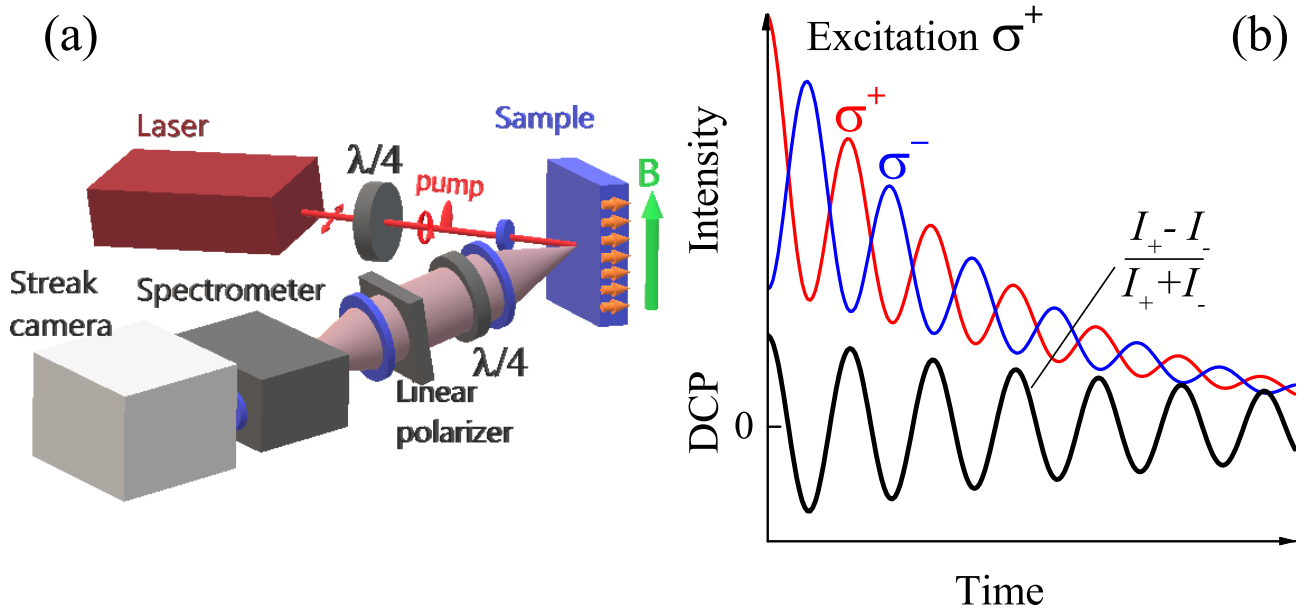


Рис. 1.5: (a) Схема регистрации динамики ФЛ с разрешением по поляризации. (b) Иллюстрация типичной динамики ФЛ при регистрации в двух ортогональных циркулярных поляризациях (красная и синяя кривые) при циркулярно-поляризованном возбуждении. Черная линия показывает динамику степени циркулярной поляризации. Осцилляции связаны со спиновыми биениями в поперечном магнитном поле (геометрия Фогта).

$\tau_s \sim \hbar/|g|\mu_B\delta B_N$, которое обычно составляет до единиц наносекунд. Дальнейшая спиновая релаксация определяется динамикой ядерных спинов и влиянием электронного спина на эту динамику [21] и происходит в микро- и миллисекундном масштабе [22].

1.5 Динамика степени циркулярной поляризации фотолюминесценции

Одним из наиболее очевидных применений эффекта оптической ориентации является оптическое возбуждение спиновой системы циркулярно поляризованным светом и регистрация динамики ФЛ с разрешением по поляризации [Рис. 1.5(a)]. Если приложить магнитное поля в геометрии Фогта, перпендикулярно направлению возбуждения и регистрации, то степень циркулярной поляризации характеризуется осцилляциями, соответствующими спиновой прецессии электронов, дырок или экситонных комплексов, созданных возбуждающим световым квантом [Рис. 1.5(b)]. В частности, наблюдались спиновые биения для электронов [32, 33] и дырок [35] в КЯ, экситонов (экситон – связанное состояние электрона и дырки) в КЯ [34] и КТ [78], положительно заряженных трионов (комплексов, состоящих из двух дырок и электрона) в КТ [79, 80]. Тип носителей заряда или экситонного комплекса, которо-

му приписываются спиновые биения зависит от рассматриваемой системы. Так, например, в работах [32, 33] исследовались структуры с низкой концентрацией резидентных носителей заряда, а время спиновой релаксации дырки предполагалось коротким. Таким образом, относительно долгоживущие спиновые биения в этом случае приписывались электрону. В работах [34, 81] при нерезонансном возбуждении узкой КЯ биения приписывались электрону, а при резонансном возбуждении наблюдались биения на другой частоте, которые приписывались экситону. В работе [81] обсуждалось условие наблюдения биений экситонного спина: обменное взаимодействие между спинами электрона и дырки должно превышать скорость релаксации дырки и электрона. Отметим также, что для наблюдения прецессии экситонного спина, энергия обменного взаимодействия должна быть сравнима с зеемановской энергией для спинов электрона и дырки. Считается, что большая скорость дырочной релаксации препятствует наблюдению динамики экситонного спина как целого, а также биений спина дырки. Тем не менее, в работе [35] исследовались КЯ с высокой концентрацией электронов, что затрудняло формирование экситонов, и спин-поляризованная дырка с бóльшей вероятностью рекомбинировала с резидентным электроном, чем со спин-поляризованном фотовозбужденным электроном. В этом случае, спиновые биения приписывались дырке.

Эксперименты по исследованию осцилляций степени поляризации ФЛ в магнитном поле требуют достаточно высокого временного разрешения и обычно проводятся с использованием стрик камеры, методики up-conversion, а в не очень больших полях с использованием лавинного фотодиода. Такие измерения позволяют определить g фактор, не давая надежной информации о времени спиновой релаксации. Действительно, время наблюдения биений зачастую ограничено временем жизни фотовозбужденных носителей заряда, которое в прямозонных полупроводниковых системах обычно не превышает 1 нс. Это проблема становится особенно острой при изучении продольной спиновой релаксации, когда магнитное поле приложено в геометрии Фарадея вдоль направления регистрации излучения [82, 83]. При этом время продольной спиновой релаксации T_1 обычно превосходит время рекомбинации. Исключение составляют системы с непрямым оптическим переходом в реальном или импульсном пространстве, где время жизни фотовозбужденных носителей может составлять микро- и миллисекунды, позволяя получать достоверную информацию о спиновой релаксации из динамики ФЛ [84, 85, 86]. В последнем случае, для исследования продольной спиновой динамики уже не требуется особо высокого временного разрешения.

Для исследования медленной продольной спиновой релаксации резидентных носителей заряда применяют модифицированный метод, основанный на регистрации ФЛ по принципу “накачка–зондирование” [17, 18, 19, 20]. При этом импульс накачки и импульс зондирования

вырезается оптическим модулятором из одного луча, возбуждающего электронную систему [17]. Длительности импульсов накачки и зондирования, а также задержка между этими импульсами, превышают время рекомбинации в исследуемых системах. При этом циркулярно-поляризованный импульс накачки достаточно большой длительности ориентируют спиновую систему, доводя ее до насыщения. А импульс зондирования, имеющий ту же циркулярную поляризацию, что и импульс накачки, используется для измерения степени этого спинового насыщения посредством измерения интенсивности созданной им ФЛ. По мере увеличения задержки между импульсами накачки и зондирования, происходит спиновая релаксация и система выходит из насыщения, соответственно увеличивается интенсивность ФЛ, возбуждаемая зондирующим лучом. Данный метод позволяет измерять продольную спиновую релаксацию с временным разрешением, определяемым временем излучательной рекомбинации и временным разрешением регистрирующей электроники.

Стоит также отметить метод измерения времени T_1, использованный в работе [87], где исследуемая одиночная КТ непрерывно возбуждалась, однако поляризация этого возбуждения периодически переключалась между σ^+ и σ^-. При этом детектировалась ФЛ с поляризацией σ^+ с помощью фотодетектора с достаточно высоким временным разрешением. При переключении поляризации накачки, авторы напрямую наблюдали переходный процесс переключения поляризации ФЛ, который характеризовался временем T_1.

Методы, основанные на регистрации ФЛ обладают непревзойденной чувствительностью среди оптических методов, позволяя получать обширную информацию о спиновой динамике отдельных объектов (КТ или люминесцентных центров), в том числе, комбинируя измерение ФЛ с ЭПР методами [54, 7] и транспортными методами [88, 89, 22]. При этом, как уже упоминалось, методы обладающие высоким временным разрешением не подходят для измерения длительных времен релаксации. Также методы на основе ФЛ не позволяют, например, исследовать продольную спиновую релаксацию в системах с большой концентрацией резидентных носителей. Для таких систем хорошо подходит расширенный метод накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения, о котором будет рассказано в следующей главе.

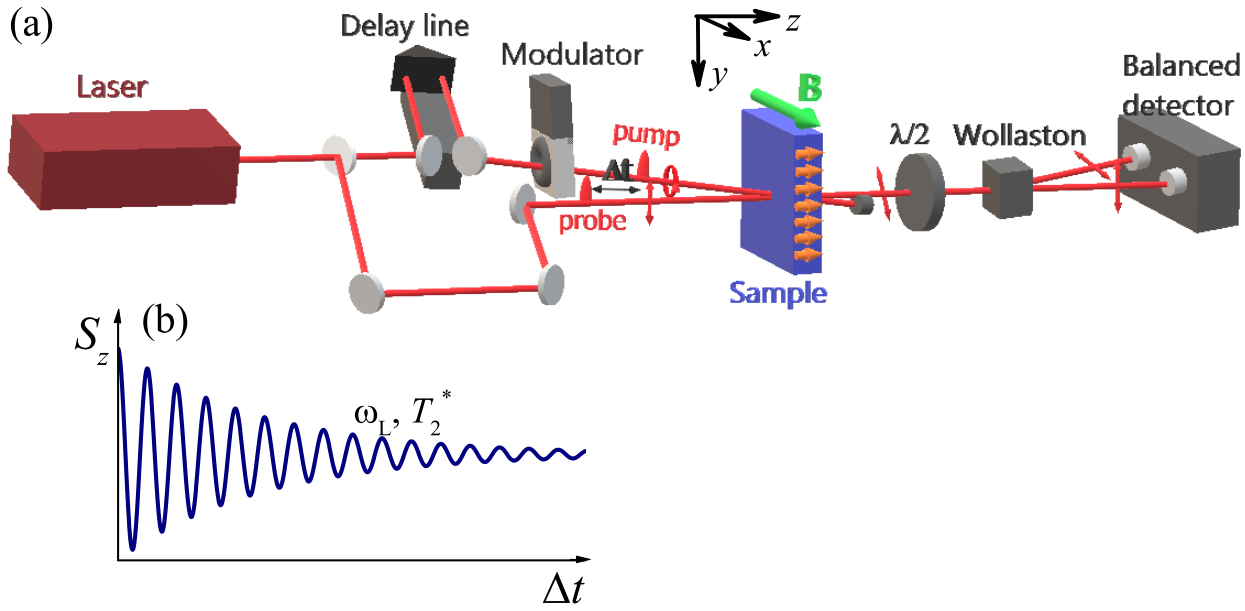


Рис. 1.6: (a) Схема метода накачки–зондирования с измерением фарадеевского вращения. (b) Пример динамики спиновой поляризации в поперечном магнитном поле.

1.6 Метод накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения

Наиболее прямым и универсальным методом исследования спиновой динамики является метод накачки–зондирования (pump–probe), в котором электронные спины в системе ориентируются лазерным импульсом накачки (pump). Затем намагниченность, вызванная спиновой поляризацией, детектируется с помощью линейно поляризованного луча зондирования (probe). При этом измеряется поворот плоскости поляризации зондирующего луча при его прохождении через образец (фарадеевское вращение) или отражении от образца (керровское вращение).

Метод накачки–зондирования с использованием импульсных лазеров начал применяться с конца 1970-х – начала 1980-х. При этом в основном исследовалось влияние импульса накачки, возбуждающего неравновесную электронно-дырочную систему, на пропускание или отражение луча зондирования [90, 91, 92, 93, 94]. Этот метод позволил получить прямой доступ к процессам энергетической релаксации носителей заряда и их рекомбинации. Уже в середине 1980-х возникла идея детектирования намагниченности в образце, созданной или измененной с помощью импульса накачки, используя эффект Фарадея для импульса зондирования [95, 96]. В современном варианте метод накачки–зондирования начал применяться в 1990-х с использованием спиновой ориентации циркулярно поляри-

зованным лазерным импульсом и зондирования линейно поляризованным лазерным импульсом [9, 10]. В частности, в работе [9] впервые наблюдались спиновые биения в поперечном магнитном поле. С этого момента данный метод получил широкое распространение [97] для исследования спиновой динамики носителей заряда в объемных системах [10, 98, 99, A13], КЯ [9, 24, 25, 26, 27, 28, 29, 30, 31], традиционных эпитаксиальных КТ [100, 23, 101, 102, 103], КТ, излучающих в телекоммуникационном диапазоне [A17, A15, A14], коллоидных КТ [104, 105, 106].

Схема метода накачки–зондирования с измерением фарадеевского вращения приведена на Рис. 1.6(а). Для его реализации необходим импульсный лазер с длительностью импульса меньшей, чем характерные времена спиновой динамики. Луч лазера расщепляется с помощью делителя луча на луч накачки и луч зондирования. Луч накачки проходит через линию задержки, обычно состоящую из ретрорефлектора на механической подвижке. Далее с использованием эластооптического или электрооптического модулятора поляризация луча накачки из исходной линейной преобразуется в циркулярную, и луч накачки фокусируется на образце. Поляризация луча зондирования остается линейной, и он также фокусируется на образце в то же место, что и луч накачки. Далее анализируется поляризация луча зондирования, прошедшего через образец, измеряется угол фарадеевского вращения. Для этого его поляризация с помощью фазовой пластинки $\lambda/2$ поворачивается так, чтобы составить угол примерно 45° к горизонтальному направлению. Далее луч проходит через призму Волластона, которая расщепляет его на два луча, идущих под углом и имеющих ортогональные линейные поляризации. Эти два луча попадают на фотодиоды балансного детектора, измеряющего разность интенсивностей между лучами. Изначально с помощью пластинки $\lambda/2$ интенсивность двух лучей выравнивается. Поворот плоскости поляризации, фарадеевское вращение, вызывает рассогласование интенсивностей указанных лучей, что детектируется балансным детектором. В эксперименте измеряется сигнал с балансного детектора, усиленный синхронным усилителем, в зависимости от временной задержки между импульсами накачки и зондирования. Для улучшения отношения сигнал/шум в данной схеме циркулярная поляризация луча накачки модулируется от σ^- до σ^+ с частотой, обычно составляющей от 1 до 100 кГц, и измеряется разность сигналов, соответствующая этим поляризациям, с помощью синхронного усилителя.

Зачастую бывает, что исследуемая структура находится на подложке, которая непрозрачна для излучения лазера. В этом случае анализируют поворот поляризации луча, отраженного от поверхности, так называемое керровское вращение.

Оказывается, что проходя через образец или отражаясь от его поверхности, спиновая

поляризация приводит не только к повороту плоскости поляризации, но также к возникновению эллиптичности, которую также можно детектировать. Для этого на схеме Рис. 1.6(a) в луч зондирования ставится вместо пластинки $\lambda/2$ пластинка $\lambda/4$, которая вместе с призмой Волластона преобразует луч со слегка эллиптичной поляризацией в два ортогонально линейно поляризованных луча, разность интенсивностей которых пропорциональна эллиптичности луча, прошедшего через образец. Фарадеевская (керровская) эллиптичность также пропорциональна спиновой поляризации в образце, давая ту же информацию, что и фарадеевское (керровское) вращение, однако она менее чувствительна к длине волны лазера и в некоторых системах дает бóльший сигнал [102].

Мы рассмотрели вырожденный по длине волны метод накачки–зондирования, когда лучи накачки и зондирования расщепляются из общего лазерного луча и их длина волны волны одинакова. Эта длина волны обычно настраивается в резонанс с оптическим переходом, например, с энергией экситона. Бывает также невырожденный метод накачки–зондирования, когда длины волн луча накачки и зондирования различны. Это придает дополнительную гибкость эксперименту и может быть реализовано с помощью синхронизированных импульсных лазеров или с применением параметрического усилителя/осциллятора.

При приложении магнитного поля перпендикулярно направлению распространения лучей накачки и зондирования (в геометрии Фогта) спин, ориентированный импульсом накачки, начинает прецессировать вокруг поля. Измеряя фарадеевское/керровское вращение в зависимости от временной задержки можно наблюдать кривую, пример которой приведен на Рис. 1.6(b). Эта кривая отражает динамику проекции спина на направление луча зондирования. Из нее можно, в частности, определить частоту ларморовской прецессии и время ее затухания. Именно возможность прямого измерения спиновой динамики с высоким временным разрешением определяет популярность метода накачки–зондирования.

Отметим, что спиновая ориентация носителей заряда в данном методе происходит так, как это описано в разделе “оптическая ориентация”. При этом спиновую поляризацию могут приобретать как фоторожденные, так и резидентные носители заряда. В последнем случае спиновая прецессия может наблюдаться в течение времени, существенно превышающего время рекомбинации. Резонансное фотовозбуждение полупроводника обычно наиболее эффективно, когда энергия светового кванта соответствует энергии экситона – связанного состояния электрона и дырки. Таким образом, при циркулярно-поляризованном возбуждении рождается поляризованный по спину экситон. Здесь дело осложняется тем, что между электронным и дырочным спином существует обменное взаимодействие [107, 108, 109], которое зависит от степени перекрытия волновых функций электрона и дырки. Если энергия

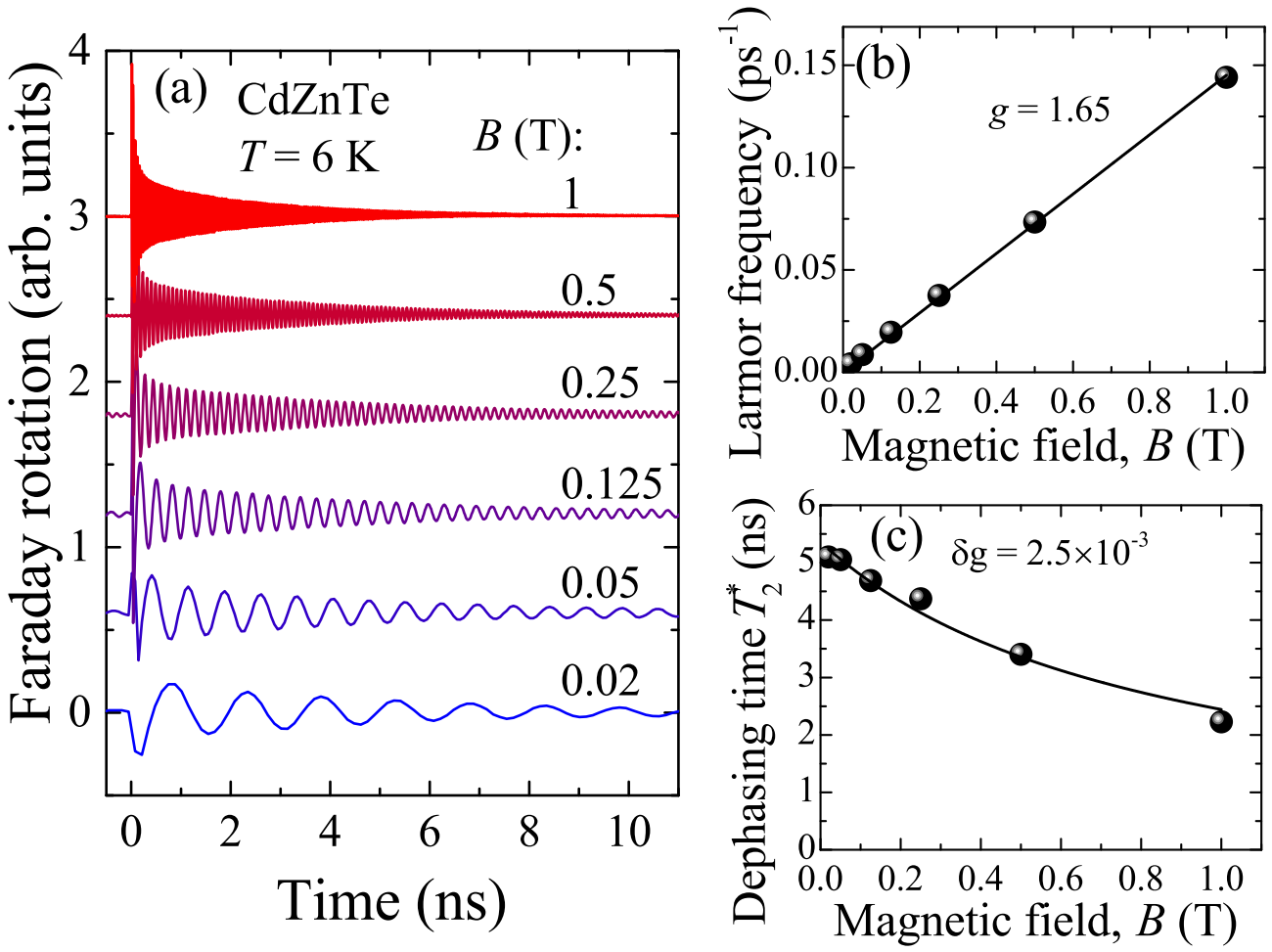


Рис. 1.7: (a) Динамика спиновой поляризации объемного CdZnTe при различных значениях магнитного поля, приложенного в геометрии Фогта. (b) Зависимость ларморовской частоты спиновой прецессии от магнитного поля. Линия показывает аппроксимацию линейной зависимостью. (c) Зависимость времени затухания спиновой прецессии от магнитного поля. Линия показывает обратную зависимость в соответствии с формулой (1.5).

Зеемана для электронного и дырочного спинов много больше обменного расщепления, то спины электрона и дырки в магнитном поле прецессируют независимо. В противном случае, а также если обменное взаимодействие превышает скорость спиновой релаксации для электрона и дырки, спин экситона совершает прецессию как целое. Удивительно, но до сих пор не было убедительных сведений о наблюдении спиновой прецессии экситонного спина методом накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения. Лишь в работе [103] были указания на наблюдение обменного электрон-дырочного взаимодействия при исследовании когерентной спиновой прецессии носителей заряда в КТ. Таким образом, в подавляющем большинстве случаев в данном методе наблюдается независимая спиновая динамика электронов и дырок. Более того, эта динамика зачастую соответствует резидентным носителям заряда, и время ее затухания намного превосходит время излучательной рекомбинации.

Пример спиновой динамики в объемном полупроводнике CdZnTe в поперечном магнитном поле показан на Рис. 1.7(a). При увеличении магнитного поля увеличивается частота спиновой прецессии ω_{L}. Зависимость этой частоты от магнитного поля обычно, и в данном случае, линейная [Рис. 1.7(b)] в соответствии с уравнением (2). Это позволяет определить g фактор. Отметим, что в некоторых системах наблюдается отклонения зависимости $\omega_{\mathrm{L}}(B)$ от линейной, что связано с зависимостью g фактора от магнитного поля [30, 31, 110]. Также общим местом в спиновой динамике, измеренной методом накачки–зондирования, является ускорение ее затухания при увеличении магнитного поля. В нашем случае зависимость времени затухания от магнитного поля приведена на Рис. 1.7(c). Видно, что это время уменьшается с B. Это время обычно называют временем неоднородной дефазировки спинового ансамбля и обозначают как T_2^*. Действительно, обычно в экспериментах накачки–зондирования мы наблюдаем динамику суммарной поляризации спинового ансамбля. При этом время затухания спиновой прецессии отдельных электронов, соответствующее времени спиновой когерентности T_2, может быть достаточно большим. Однако из-за неоднородности системы, частоты спиновой прецессии отдельных электронов могут отличаться друг от друга. В результате при импульсной ориентации спинового ансамбля прецесии отдельных электронов со временем расплываются по фазе. Это иллюстрирует Рис. 1.8(a). Таким образом, суммарная спиновая поляризация электронного ансамбля затухает значительно быстрее, чем поляризация отдельного спина. Это рассуждение легко формализовать уравнением

$$\frac{1}{T_2^*} = \frac{1}{T_2} + \delta\omega_{\mathrm{L}}, \tag{1.4}$$

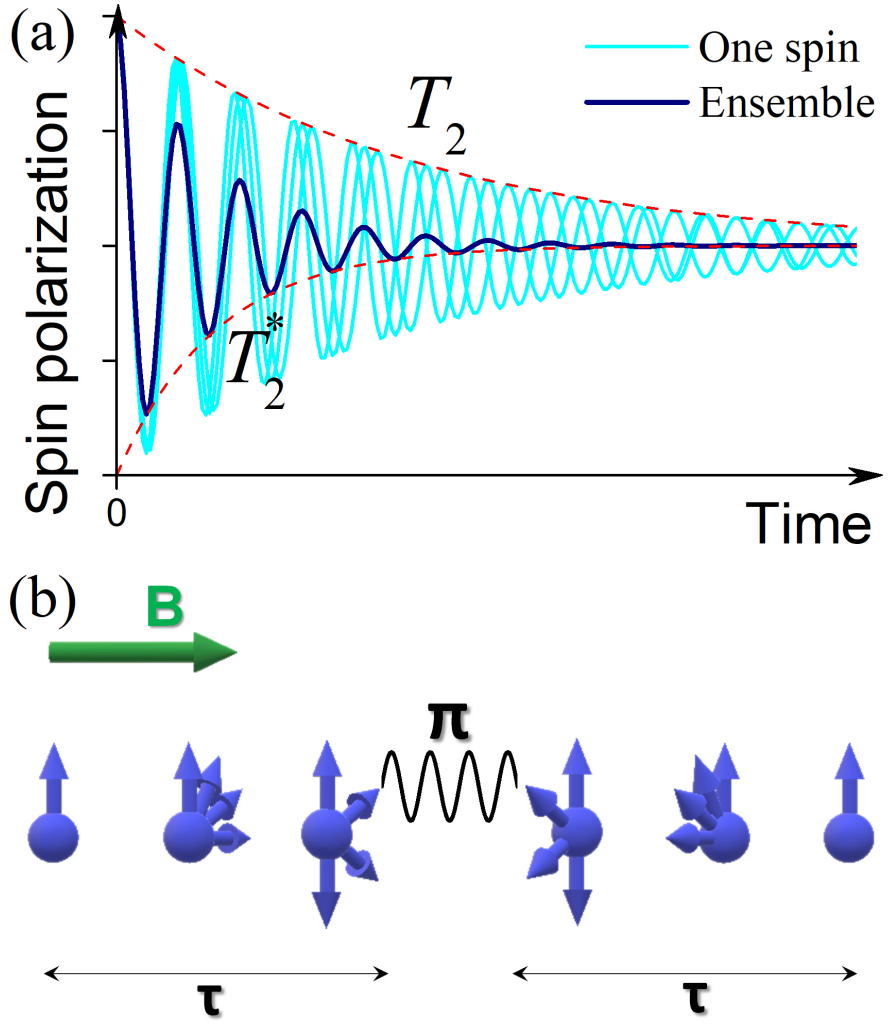


Рис. 1.8: (a) Динамика спиновой поляризации в поперечном магнитном поле. Светлые линии соответствуют одиночным спинам, темная линия соответствует спиновой поляризации электронного ансамбля. (b) Иллюстрация эффекта спинового эха.

где $\delta\omega_{\mathrm{L}}$ – разброс частот спиновой прецессии в ансамбле. Этот разброс может быть обусловлен как статическими флуктуациями внутренних эффективных магнитных полей в системе (например, вызванных сверхтонким взаимодействием с ядерными спинами [76, 21]) $\delta\omega_{\mathrm{L},0}$, так и разбросом g факторов δg. Если $\delta\omega_{\mathrm{L},0}$ обычно не сильно зависит от магнитного поля, то разброс g факторов приводит к разбросу частот, пропорциональному B. Так что

$$\frac{1}{T_2^*(B)} = \frac{1}{\tau_{\mathrm{s}}} + \frac{\delta g \mu_{\mathrm{B}} B}{\hbar}, \tag{1.5}$$

где $\tau_{\mathrm{s}} = T_2^*(0)$. Это уравнение обычно хорошо описывает зависимость T_2^* от магнитного поля, в частности, зависимость на Рис. 1.7(c) (линия).

Во многих системах, особенно с локализованными электронами, $T_2^* \ll T_2$, что делает невозможным измерение времени спиновой когерентности T_2 напрямую методом накачки–зондирования. Этой проблеме подвержены и большинство других, непрямых методов. Например, ширина резонанса ЭПР, пиков резонансного спинового усиления, спинового шума (об этих методах будет рассказано ниже) определяется именно временем T_2^*. Однако существует замечательный метод спинового эха, представленный Ханом в 1950 году [50], который позволяет решить эту проблему. В основном этот метод применяется в режиме ЭПР. Суть метода проиллюстрирована на Рис. 1.8(b) и заключается в следующем. Вначале происходит ориентация спинового ансамбля в магнитном поле. Затем спины начинают прецессировать, и в результате разброса частот происходит их расфазировка. Затем с помощью π-импульса РЧ поля спины инвертируются так, что в результате они начинают сфазироваться. И через время τ, равное времени прихода π-импульса, происходит фокусировка спинов. Это позволяет устранить эффект разброса частот спиновой прецессии. Также данный подход применяют с использованием оптических импульсов [111, 112]. Есть и более экзотические методы измерения времени T_2, которые основаны на измерении спиновых корреляций высокого порядка [113], а также наблюдении синхронизации спиновых мод [23]. Во второй части диссертации мы представим простой метод определения времени T_2, основанный на комбинации оптической и РЧ спиновой ориентации.

Отметим, что прикладывая магнитное поле вдоль нормали к образцу и луча накачки (в геометрии Фарадея), можно наблюдать монотонное затухание спиновой поляризации, отражающее продольную спиновую релаксацию со временем T_1.

При всей универсальности и достоинствах метода накачки–зондирования, отметим также его недостатки. О первом недостатке уже было сказано выше – это невозможность определения времени T_2. Вторая проблема возникает если длительность спиновой динамики пре-

вышает диапазон измерений, который определяется длиной линии задержки (~ 10 нс). Эта проблема имеет место в большом количестве систем при низких температурах, особенно при исследовании продольной спиновой динамики. Она решается расширенным методом накачки–зондирования [A16], о котором будет рассказано в следующей главе. Также данный метод, даже его расширенная версия, не позволяет приписать время T_1 конкретному спиновому резонансу, что является проблемой в сложных системах с более чем одним спиновым резонансом. О решении данной проблемы будет рассказано в главе 6.

1.7 Резонансное спиновое усиление

Следует отметить, что оптические методы спиновой ориентации являются нерезонансными в том смысле, что в них участвуют все спины, соответствующие оптическому переходу. Метод ЭПР, напротив, основан на резонансе частоты ларморовской прецессии и РЧ поля. Однако и при оптической спиновой ориентации возможно наблюдение резонанса, так называемого резонансного спинового усиления (РСУ), возникающего при спиновой ориентации импульсным лазером, когда частота спиновой прецессии кратна частоте следования лазерных импульсов. В поле, приложенном в геометрии Фогта, если время затухания спиновой прецессии T_2^* больше периода повторения лазерных импульсов T_o, то спиновая поляризация, созданная последующим импульсом может как усилить, так и ослабить спиновую поляризацию от предыдущих импульсов [Рис. 1.9(a)]. Усиления происходит при условии

$$f_\text{L} = mf_\text{o}, \tag{1.6}$$

где $m = 0, 1, 2, ...$ – целое число, $f_\text{L} = \omega_\text{L}/2\pi$ – частота Лармора, $f_\text{o} = 1/T_\text{o}$ – частота следования лазерных импульсов. Это условие можно достичь, меняя ларморовскую частоту посредством изменения магнитного поля. Если провести эксперимент по схеме “накачка–зондирование” и регистрировать сигнал на небольшой отрицательной задержке импульса зондирования относительно импульса накачки $\Delta t \to -0$, то спиновая поляризация, пришедшая от предыдущих лазерных импульсов запишется как:

$$\begin{aligned} S &= \Delta S_0 \sum_{n=1}^{\infty} \cos(n\omega_\text{L} T_\text{o}) \exp(-nT_\text{o}/T_2^*) = \\ &= \frac{\Delta S_0}{2} \left(\frac{\sinh(T_\text{o}/T_2^*)}{\cosh(T_\text{o}/T_2^*) - \cos(\omega_\text{L} T_\text{o})} - 1 \right), \end{aligned} \tag{1.7}$$

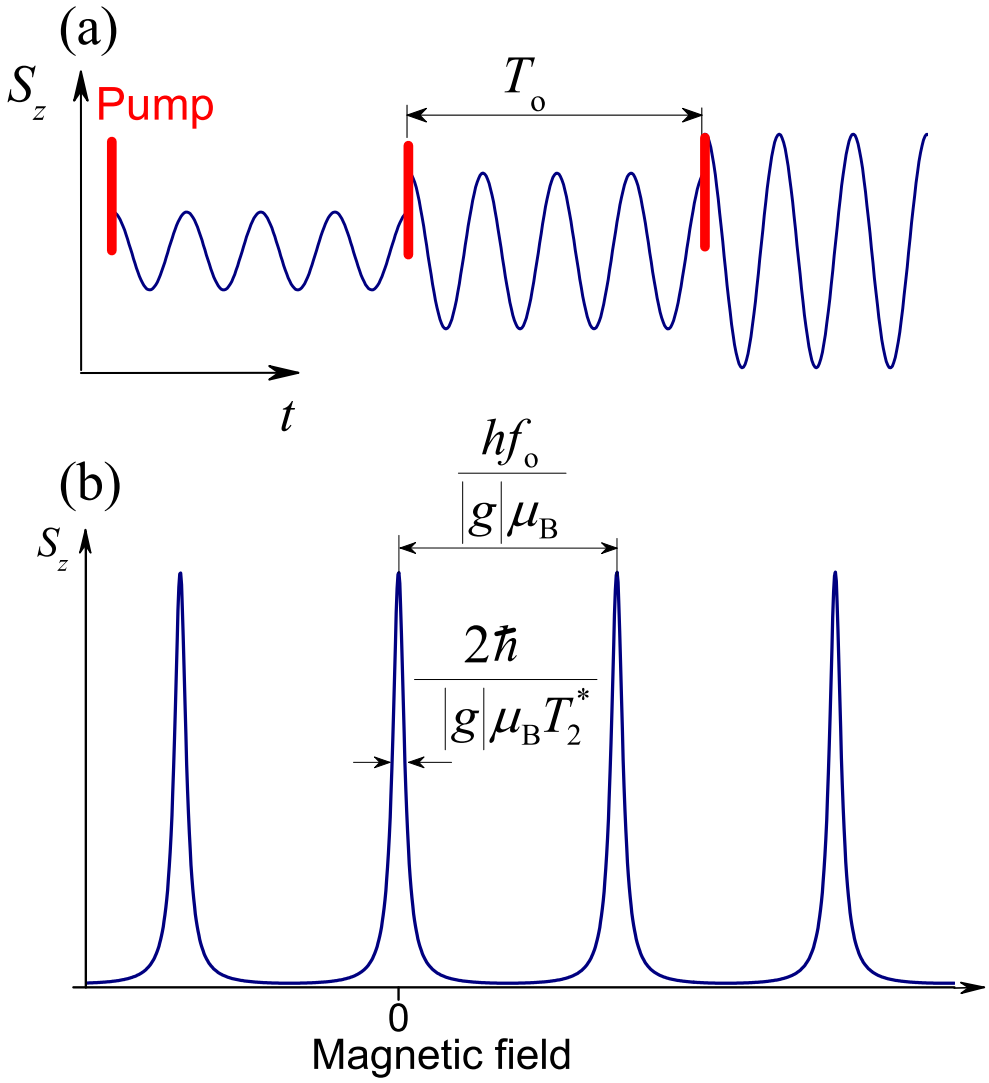


Рис. 1.9: (a) Усиление спиновой поляризации последующими лазерными импульсами (резонансное спиновое усиление). (b) Зависимость спиновой поляризации от магнитного поля (кривая РСУ). Пики соответствуют условию резонанса (1.6).

где ΔS_0 – спиновая поляризация, созданная одним лазерным импульсом. Зависимость накопленной спиновой поляризации S от магнитного поля приведена на Рис. 1.9(b). Она характеризуется наличием пиков, когда магнитное поле и частота $\omega_{\rm L} = |g|\mu_{\rm B}B/\hbar$ удовлетворяет условию (1.6). Рассмотрим вид зависимости (1.7) вблизи пика $f_{\rm L} = mf_{\rm o}$. При условии $T_2^* \gg T_{\rm o}$

$$S \approx \Delta S_0 \frac{T_2^*}{T_{\rm o}} \frac{1}{1 + (\omega_{\rm L} - 2\pi f_{\rm o} m)^2 T_2^{*2}}. \tag{1.8}$$

Таким образом, пики имеют форму лоренциана. Расстояние между пиками $\Delta B = 2\pi\hbar f_{\rm o}/|g|\mu_{\rm B}$ позволяет определить g фактор, а ширина пика $2\delta B = 2\hbar/|g|\mu_{\rm B}T_2^*$ позволяет определить T_2^*.

Эффект РСУ был открыт в атомных системах Беллом и Блумом [120] и в современном виде для полупроводников Киккавой и Авшаломом [99]. Теория этого эффекта подробно обсуждалась в работах [114, 115]. Данный эффект применялся для исследования долгоживущей спиновой динамики в объемных n-GaAs [99] и Ge [116], в КЯ [117, 118], а также в КТ [119].

Отметим, что для наблюдения РСУ не требуется два отдельных луча накачки и зондирования. Это было продемонстрировано в работах [120, 121, 122], где РСУ наблюдалось в однолучевой схеме. При этом луч импульсного лазера как создавал спиновую поляризацию, так и использовался для ее детектирования посредством измерения коэффициента пропускания.

В данной диссертации мы будем активно использовать эффект РСУ, проводя измерения также в однолучевой схеме, однако детектируя фарадеевское вращения для луча, поляризация которого изначально является эллиптической.

Главным достоинством данного метода является возможность определения времени T_2^*, превышающего период повторения лазерных импульсов. К недостаткам традиционно стоит отнести невозможность определения времени когерентности T_2, а также то, что данный метод является непрямым, не позволяя исследовать все детали сложной спиновой динамики.

1.8 Метод спинового шума

В системе, состоящей из большого числа N электронных спинов, эти спины в магнитном поле совершают ларморовскую прецессию с одинаковой (в пределах $1/T_2^*$) частотой $\omega_{\rm L} = |g|\mu_{\rm B}B/\hbar$. Однако фазы этих прецессий хаотичны, и поэтому вектор среднего спина равен нулю, $< \mathbf{S} >= 0$. При этом, однако, среднеквадратичное отклонение полного спина от среднего определяется выражением, $\delta S \equiv \sqrt{< S^2 >} = \sqrt{< (\sum_{i=0}^{N} \mathbf{s}_i)^2 >} = \sqrt{N < s^2 >} \propto \sqrt{N}$.

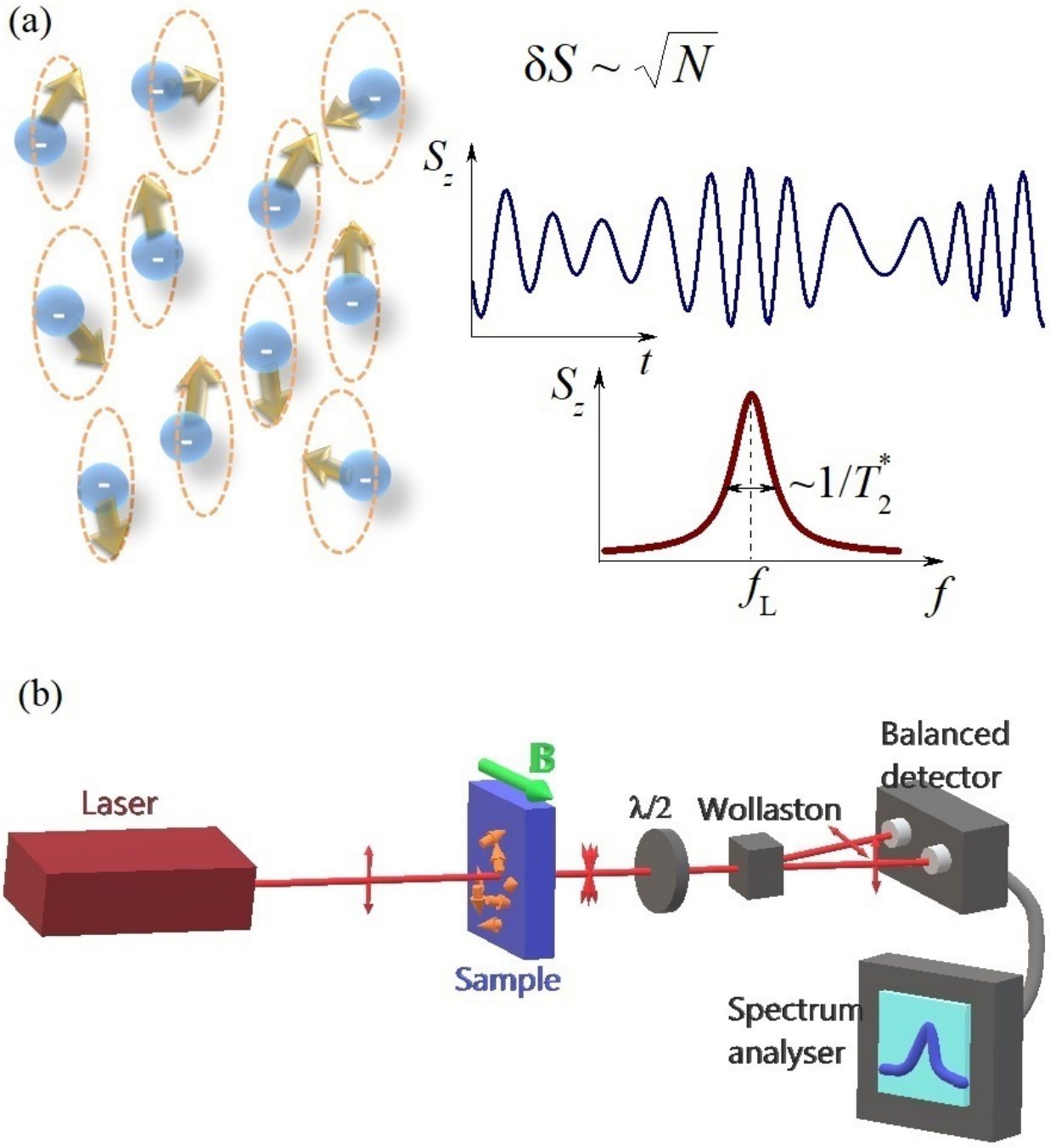


Рис. 1.10: (a) Иллюстрация спинового шума. В спиновом ансамбле прецессии отдельных спинов происходят с близкими частотами, однако с произвольными фазами. В результате для ансамбля из N электронов средний спин пропорционален $\sqrt{N}$. Прецессию среднего спина можно зарегистрировать и разложить полученный сигнал в спектр Фурье, из которого можно определить ларморовскую частоту и время неоднородной дефазировки T_2^*. (b) Схема эксперимента по регистрации спинового шума.

Для большого N величина δS также достаточно велика, что вполне позволяет ее детектировать. Временная динамика полного спина [Рис. 1.10(a)] отражает его флуктуации с амплитудой δS. Фурье-спектр мощности флуктуаций общего спина (спинового шума) $\int < S(0)S(t) > \exp(i\omega t)dt$ характеризуется пиком на частоте $\omega = \omega_{\mathrm{L}}$. Ширина данного пика определяется неоднородным временем спиновой дефазировки T_2^*.

Спектр спинового шума можно измерить, пропуская через образец линейно поляризованный лазерный луч (не обязательно импульсного лазера) в геометрии Фогта и измеряя фарадеевское вращение поляризации данного луча [Рис. 1.10(b)] аналогично тому как детектируется спиновая поляризация в методе накачки–зондирования. Сигнал с балансного детектора, пропорциональный углу фарадеевского вращения, то есть проекции спина на направление луча, подается на анализатор спектра.

Впервые такой эксперимент был проведен Е. Б. Александровым и В. С. Запасским в 1981 г в газе из атомов натрия [123]. Затем в нулевом магнитном поле исследовался спиновый шум атомов цезия [124], эксперименты по изучению спинового шума другими методами проводились для ядер [125], ферромагнитных частиц [126], атомов рубидия [127]. Более широкое распространение метод спинового шума получил после его подробного исследования в атомах рубидия [128] и, особенно после наблюдения спинового шума в твердотельной системе (n-GaAs) [129]. Были подробно исследованы различные аспекты спинового шума в объемном GaAs [130, 131] и КТ [132, 133, 134]. На основе спинового шума был предложен метод определения однородной спектральной ширины КТ в ансамбле [135], изучена электронная диффузия [136]. Одним из главных ограничений метода спинового шума является конечное время отклика детектора, которое определяет максимально возможную частоту спинового резонанса и, соответственно, магнитное поле. Это ограничение было снято в работе [137], где был предложен гетеродинный метод детектирования спинового шума, который также повышал его чувствительность. Увеличения чувствительности спинового шума удалось добиться также с применением гомодинирования [138, 139].

Метод спинового шума позиционируется как метод не возмущающий электронную спиновую систему, так как здесь отсутствует спиновая накачка. Однако, как показывает практика, для получения хорошего отношения сигнал/шум необходима достаточно большая интенсивность зондирующего луча. При этом увеличение интенсивности зондирующего луча приводит к уменьшению времени спиновой дефазировки, что очевидно свидетельствует о возмущении системы [138]. К достоинствам данного метода стоит отнести простоту его оптической части. К недостаткам стоит отнести, традиционно, то что данный метод является непрямым, а также не позволяет определить однородное время спиновой когерентности. Не

так давно, однако, было предложено использование резонансного РЧ поля при измерении спинового шума, что должно позволить определить однородное время спиновой когерентности [140].

1.9 Метод спиновой инерции

Из всех трех времен спиновой релаксации T_1, T_2 и T_2^*, время продольной спиновой релаксации T_1 обычно самое длинное. При низких температурах оно зачастую превосходит диапазон сканирования линии задержки в методе накачки–зондирования, что делает его определение невозможным. Также его нельзя извлечь в методе РСУ, так как РСУ наблюдается лишь в поперечном магнитном поле и основано на спиновой прецессии. Методом спинового шума, в принципе, можно измерить T_1, если приложить магнитное поле в геометрии Фарадея. Оно определяется из ширины пика спинового шума на нулевой частоте. При этом, однако, трудно отделить спиновый шум от других типов шумов на низких частотах.

В 2015 году был предложен простой метод определения времени T_1 на основе метода накачки–зондирования [141]. В этом эксперименте задержка между импульсами накачки и зондирования была фиксирована, а поляризация или интенсивность луча накачки модулировалась. При этом измерялась амплитуда соответствующей модуляции спиновой поляризации в зависимости от частоты модуляции f_m.

Мы рассмотрим модуляцию поляризации луча накачки между σ^- и σ^+ как это изображено черной кривой на Рис. 1.11(a) так, что поляризация σ^+ соответствует положительной спиновой накачке P, а σ^- – отрицательной $-P$. Если период модуляции много больше времени T_1, то в течении полупериода спиновая поляризация достигает стационарного значения и, соответственно, амплитуда спиновой модуляции [красная кривая на Рис. 1.11(a)] не сильно зависит от частоты модуляции. При увеличении f_m так, что период модуляции сравнивается или становится меньше T_1, спиновая поляризация не успевает достигнуть стационарного значения, и модуляция спиновой поляризации падает с f_m [Рис. 1.11(b)]. Таким образом, измеряя зависимость модуляции спиновой поляризации от f_m можно определить T_1. Эту зависимость легко описать количественно, записав уравнение Блоха [64] для компоненты спина, направленной вдоль магнитного поля, которое параллельно вектору накачки:

$$\frac{dS}{dt} = -\frac{S}{T_1} + P\sin(2\pi f_\mathrm{m} t). \tag{1.9}$$

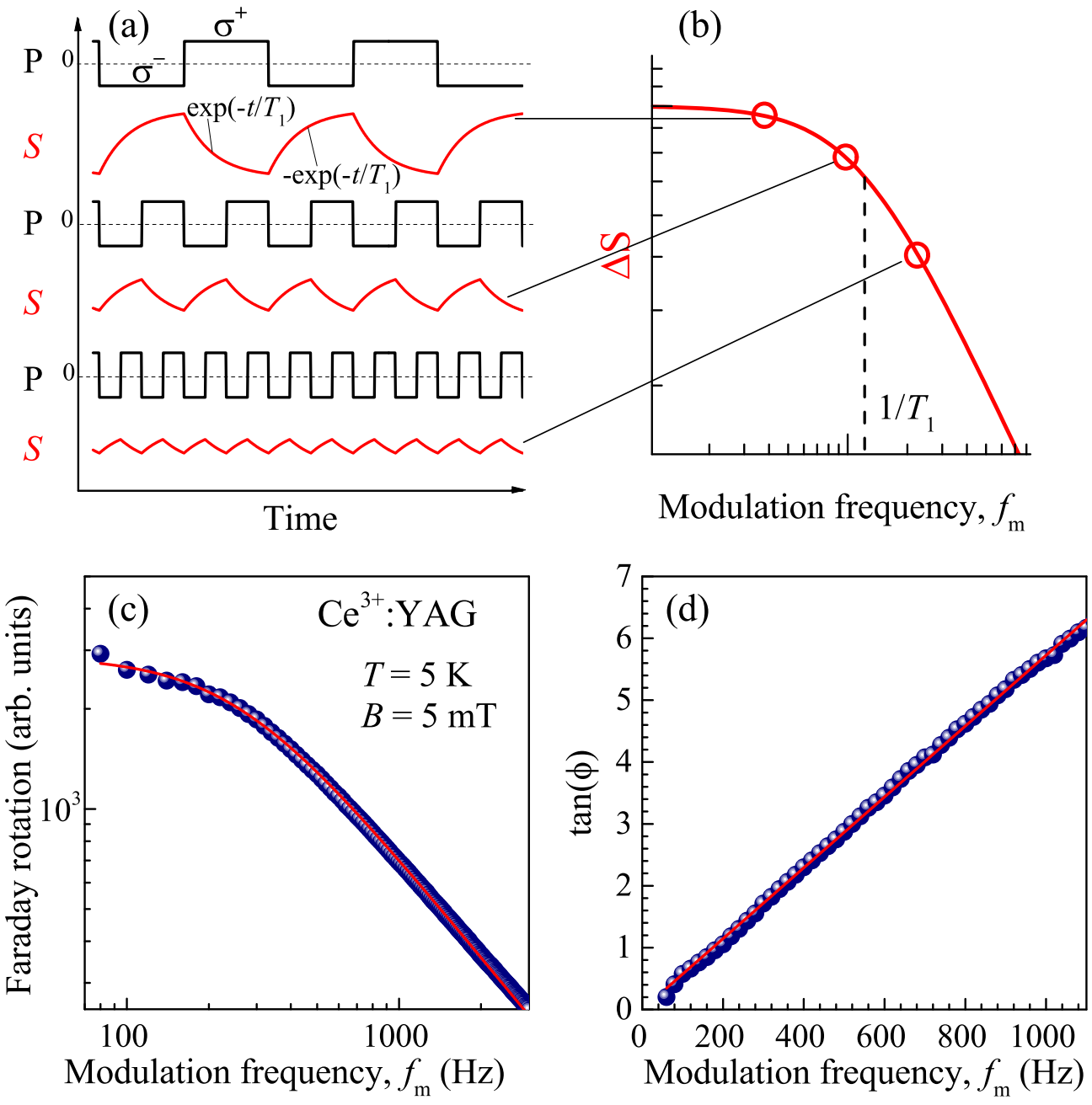


Рис. 1.11: (a) Временные зависимости мощности спиновой накачки (черные кривые) и соответствующей динамики спиновой поляризации в магнитном поле, приложенном в геометрии Фарадея. (b) Рассчитанная зависимость амплитуды спиновой поляризации от частоты модуляции накачки. (c) Экспериментальная зависимость амплитуды спиновой поляризации от частоты модуляции накачки для ионов Ce^{3+} в решетке YAG. Красная линия показывает аппроксимацию экспериментальных данных формулой (1.11).(d) Зависимость тангенса фазы, на которую модуляция спинового сигнала задержана относительно модуляции накачки.

Стационарное решение данного уравнения имеет вид [A9, A6]:

$$S(t) = S_{\mathrm{a}} \sin(2\pi f_{\mathrm{m}} t - \phi), \tag{1.10}$$

где

$$S_{\mathrm{a}} = \frac{PT_1}{\sqrt{1 + (2\pi f_{\mathrm{m}} T_1)^2}} \tag{1.11}$$

$$\tan\phi = 2\pi T_1 f_{\mathrm{m}}. \tag{1.12}$$

В данных экспериментах используется синхронное детектирование на частоте f_{m}. Таким образом, сигнал, полученный с синхронного усилителя, пропорционален амплитуде S_{a}. Кроме того, используя синхронный усилитель, легко определить фазу ϕ задержки модуляции спиновой поляризации относительно модуляции накачки. Подробнее об этом написано в главе 6. Для простоты выкладок мы рассмотрели синусоидальную модуляцию поляризации луча накачки. Легко показать, что для прямоугольной модуляции, показанной на Рис. 1.11(a) зависимость амплитуды спиновой модуляции, и фазы, полученных с синхронного усилителя, от f_{m} имеет такой же вид. Отметим, что для реализации данного метода совсем не обязательно использование импульсного лазера.

Пример зависимостей амплитуды спиновой модуляции и тангенса фазы ϕ от f_{m}, измеренных для ионов Ce^{3+} в решетке YAG (об этой системе пойдет речь в главах 5 и 6), показана на Рис. 1.11(c),(d). Они хорошо описываются уравнениями (1.11),(1.12) и дают время $T_1 \approx 0.8$ ms. Отметим, что измеренное таким образом время T_1 зависит от интенсивностей лучей накачки и зондирования, которые вносят возмущение в систему. Для того чтобы определить T_1 для невозмущенной системы необходимо построить зависимость скорости релаксации $1/T_1$ от суммарной мощности лучей накачки и зондирования и аппроксимировать эту зависимость в нулевую мощность. Подробнее об этом написано в разделе 6.3.6.

Изначально в методе спиновой инерции измерялась лишь зависимость амплитуды спиновой модуляции от частоты [141, 142]. В работах [A9, A6, 143] помимо амплитуды измерялась также и фаза задержки, что позволило увеличить точность измерений. В работах [77, 142] было показано, что измеряя кривые восстановления поляризации в продольном магнитном поле и используя метод спиновой инерции, можно помимо T_1 определить продольные g факторы носителей заряда, параметры сверхтонкого взаимодействия электронных и ядерных спинов, а также ядерные корреляционные времена.

Данный метод является хорошим дополнением к методу накачки–зондирования. При

этом, однако, данный метод является непрямым. Также в системах, имеющих несколько спиновых резонансов используя данный метод, как и метод накачки–зондирования напрямую, невозможно приписать измеренное время T_1 конкретному резонансу. Решение данной проблемы дает резонансный метод спиновой инерции, который представлен в главе 6.

Глава 2

Проявления эффектов локализации в спиновой динамике электронов в объемном n-GaAs

2.1 Введение

Известно, в полупроводниках без центра инверсии, таких как GaAs, движение электрона тесно связано с его спиновой динамикой за счет спин-орбитального взаимодействия. В частности, поэтому спиновая релаксация существенно зависит от степени локализации электронов. Степень локализации самого электрона, то есть заряда, в свою очередь, тесно связана с локализацией спина и, в основном там где это не существенно, мы не будем делать между ними различия. Приведем, однако, пример, когда различие между зарядовой и спиновой локализацией имеет место. Так, спины свободных электронов для полупроводников с большой концентрацией доноров или при высокой температуре очевидным образом делокализованы. В обратном пределе, в полупроводнике с очень маленькой концентрацией доноров при нулевой температуре электроны локализованы, перекрытие между их волновыми функциями практически отсутствует. Соответственно, отсутствует обменное взаимодействие между электронными спинами, и как спин, так и заряд являются изолированными и локализованными. При промежуточной плотности доноров, когда электроны все еще локализованы, но уже имеется существенное перекрытие их волновых функций, приводящее к обменному взаимодействию между электронными спинами, может происходить обмен спиновыми состояниями и спиновая диффузия. В этом смысле спин делокализован [15, 42, A12].

Отметим, что в n-легированном GaAs, как и в других легированных полупроводниках,

необходимо разделять делокализацию электронов, обусловленную большой концентрацией доноров, и делокализацию, вызванную увеличением температуры в полупроводнике с низкой концентрацией доноров. При нулевой температуре в полупроводнике с низкой концентрацией доноров электроны являются локализованными на донорах и система находится в фазе изолятора. Этому способствует сразу несколько факторов. Во-первых, для перехода на другой донор электрону необходимо затратить дополнительную энергию, связанную с кулоновским отталкиванием электрона уже находящегося на доноре. При низкой концентрации доноров именно эта энергия препятствует переходу электронов с донора на донор. При увеличении концентрации доноров возрастает энергия взаимодействия электрона с соседними донорами и энергетические зоны, соответствующие одному электрону на доноре и двум электронам на доноре начинают перекрываться [144], происходит переход Мотта, при котором электроны становятся делокализованными [145, 146, 147]. Другим фактором, способствующим локализации электронов, является разброс энергий локализации электронов на донорах. Даже в одноэлектронном приближении, если величина этого разброса существенно превышает энергию взаимодействия электрона с соседними донорами (интеграл перекрытия), то электрон является локализованным. Это явление называется андерсоновоской локализацией [148]. При увеличении интеграла перекрытия, например, за счет увеличения концентрации доноров, в электронном спектре возникает зона свободных состояний, происходит переход Андерсона. Аналогично к локализации приводит разброс в положении доноров при одинаковых энергиях локализации электрона на каждом доноре (модель И. М. Лифшица [149]). Все эти факторы (межэлектронное взаимодействие и беспорядок) приводят к локализации электронов при низких концентрациях доноров, которая сменяется их делокализацией при больших концентрациях. Соответствующий переход Андерсона-Мотта называется переходом металл–изолятор (MIT, metal-to-insulator transition) [150]. Напомним, что до сих пор речь шла о нулевой температуре. При повышении температуры происходит термическая активация локализованных электронов в зону свободных состояний, их делокализация, которая, как мы увидим в дальнейшем, приводит к такому же изменению спиновой динамики, как только что упомянутый переход из фазы изолятора в металлическую фазу. Поэтому в дальнейшем удобно говорить о влиянии на спиновую динамику делокализации электронов в общем, при необходимости уточняя чем вызвана эта делокализация: увеличением концентрации или температуры.

Легированный кремнием GaAs n-типа представляет собой подходящую модельную систему для изучения изменения спиновой динамики при делокализации электронов. Этот полупроводник не обладает центром инверсии, а переход от локализации к делокализации элек-

тронов можно наблюдать как изучая серию структур с возрастающим уровнем легирования, но с одинаковыми в остальном свойствами, так и увеличивая температуру в образце с низким уровнем легирования. Как уже отмечалось во Введении к диссертации, скорость спиновой релаксации в нулевом поле при низких температурах изучена достаточно подробно в серии образцов с различной концентрацией доноров: до и после перехода MIT [15, 75, 130, 151, 152]. Также сообщалось об уменьшении времени дефазировки спина T_2^* при увеличении концентрации доноров выше порога MIT в ненулевом поперечном магнитном поле, приложенном в геометрии Фогта (перпендикулярно начальному направлению спина) [99]. С другой стороны, также известно, что при низких концентрациях доноров время продольной спиновой релаксации T_1 лежит в микросекундном [17, 18] или даже миллисекундном [19, 20] диапазоне.

Целью настоящей главы является построение как можно более общей картины изменения электронной спиновой динамики в полупроводниках на примере n-GaAs как в продольном, так и в поперечном магнитном поле в зависимости от степени локализации электронов, которая меняется как с помощью изменения температуры, так и за счет исследования образцов с разными концентрациями доноров. Сложность решения данной задачи обусловлена тем, что в зависимости от концентрации доноров, магнитного поля и температуры когерентная спиновая динамика в данной системе может характеризоваться временами затухания в десятки, сотни и тысячи наносекунд, тогда как период спиновой прецессии в больших полях находится в пикосекундном диапазоне. Это делало прямое наблюдение спиновой динамики в данной системе в общем случае недоступным.

Обычно информацию о спиновых свойствах в основном получают с помощью резонансных методов, таких как электронный парамагнитный резонанс (ЭПР), оптически- детектируемый магнитный резонанс (ОДМР), комбинационное рассеяние с переворотом спина или эффект Ханле. Развитие спектроскопии накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения (см. раздел 1.6) сделало возможным прямое наблюдение когерентной спиновой динамики, в частности, ларморовской прецессии спина вокруг магнитного поля, с пикосекундным временным разрешением и открыло новые способы управления спиновыми состояниями [6, 153, 154, 23, 155]. Основным ограничением стандартного метода накачки–зондирования является ограниченный диапазон времени сканирования между импульсами накачки и зондирования. Это ограничение связано с конечной длиной механической линии задержки, которая ограничивает этот временной диапазон несколькими наносекундами, что может быть слишком мало для измерения долгоживущей спиновой динамики в твердотельных системах при низких температурах. Для измерения более длительных времен спиновой дефазировки можно использовать метод резонансного спинового усиления (РСУ, см. раздел

1.7) [99, 115], и метод спинового шума (см. раздел 1.8) [123, 128, 129, 130, 151, 137, 136], которые, однако, не дают детальной информации о сложной спиновой динамике, которая может характеризоваться неэкспоненциальным затуханием. Кроме того, продольная спиновая релаксация, характеризуемая временем T_1, обычно выходит за рамки наносекундного диапазона, так что приходится использовать непрямые оптические методы, такие как метод спиновой инерции (см. раздел 1.9) [141, 142, 77], опять же дающие ограниченную информацию о нетривиальной спиновой динамике. Также методы, основанные на анализе ФЛ (см. раздел 1.5) [17, 18, 19, 20] имеют достаточно низкое временное разрешение и применимы для измерения T_1 в системах с низкой концентрацией доноров в достаточно больших полях.

В этой главе будет представлено расширение метода накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения, которое позволяет напрямую наблюдать спиновую динамику в широком временном диапазоне с пикосекундным временным разрешением [A16]. Также с помощью данного метода мы продемонстрируем возникновение РСУ при увеличении числа импульсов накачки. Применение расширенного метода накачки–зондирования позволило получить качественно новые данные и обобщить представление о поведении спиновой системы при делокализации электронов [A12]. Мы отчетливо наблюдаем изменение характера спиновой динамики при переходе от системы локализованных спинов к системе с делокализованными спинами при увеличении либо концентрации легирования, либо температуры образца. Кроссовер проявляется в сильном сужении распределения g-факторов и резком ослаблении зависимости T_1 от магнитного поля. Также мы обнаружили неожиданное соотношение $T_1 T_2^* \approx$const, которое выполняется даже при изменении величин T_1 и T_2^* на два порядка при изменении магнитного поля или температуры. При концентрации доноров n_D чуть ниже МІТ наблюдается биэкспоненциальная продольная спиновая динамика, отражающая быстрое установление внутреннего равновесия внутри электронной спиновой системы с последующим выравниванием электронной спиновой температуры с температурой решетки. Чуть выше порога МІТ мы наблюдаем моноэкспоненциальную продольную спиновую динамику и аномальное уменьшение времени T_1 с магнитным полем. Тщательные измерения, показали, что эта аномалия связана с эффектом слабой локализации, что также подтверждается транспортными экспериментами [A8].

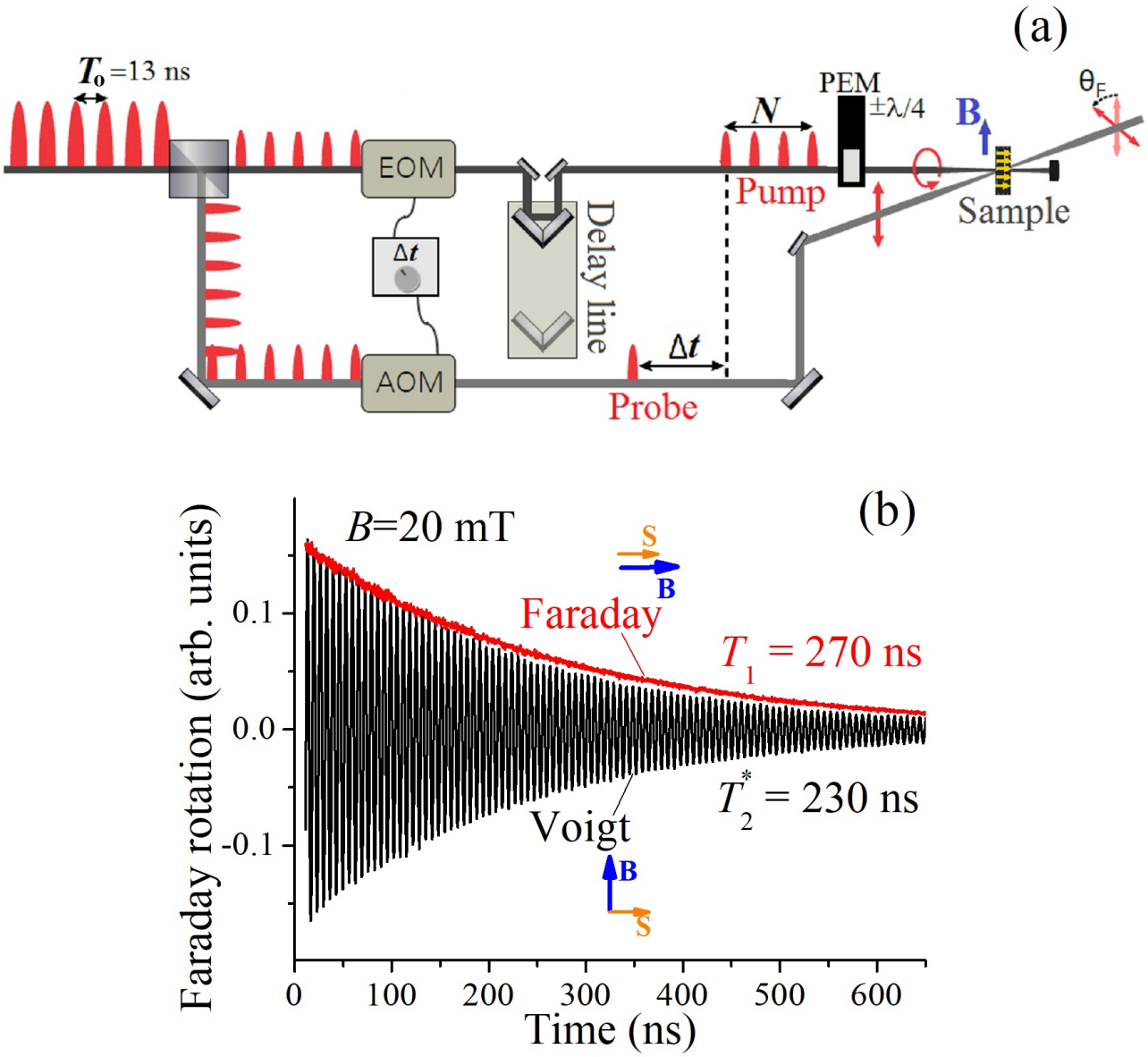


Рис. 2.1: (a) Схема расширенного метода накачки–зондирования с измерением фарадеевского вращения. В отличие от стандартного метода, здесь используются синхронизированные оптические модуляторы в лучах накачки и зондирования, которые вырезают по одному или несколько (для накачки) лазерных импульсов, позволяя менять задержку между импульсом накачки (или цугом импульсов) и импульсом зондирования с шагом кратным T_o. Точная настройка задержки между импульсами осуществляется с помощью механической линии задержки. (b) Динамика фарадеевского вращения в магнитном поле $B = 20$ мТл, приложенном в геометрии Фогта (черная линия) и Фарадея (красная линия) для объемного GaAs с концентрацией доноров $n_D = 1.4 \times 10^{16}$ см$^{-3}$ при температуре $T = 6$ K [A16].

2.2 Расширенный метод накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения

Результаты, представленные в данной главе, получены для образцов GaAs, легированных кремнием, с концентрацией доноров $n_D = 5.5 \times 10^{14}$ см$^{-3}$ (слой толщиной 2 мкм, выращенный методом молекулярно-лучевой эпитаксии), 1.0×10^{15}, 4.0×10^{15} см$^{-3}$ и 1.6×10^{16} см$^{-3}$ (слои толщиной 20, 20 и 7 мкм, соответственно, выращенные методом жидкофазной эпитаксии), 1.4×10^{16}, 3.7×10^{16} и 7.1×10^{16} см$^{-3}$ (объемные подложки толщиной 350, 170 и 170 мкм, соответственно). Образцы помещались во вставку с регулируемой температурой (2-300 K) магнитного криостата с расщепленным сверхпроводящим соленоидом. Магнитное поле до 6 Тл прикладывалось либо параллельно (геометрия Фарадея), либо перпендикулярно (геометрия Фогта) вектору распространения света, который был параллелен нормали к образцу.

Схема расширенного метода накачки–зондирования приведена на Рис. 2.1(а) [A16]. Этот метод является модификацией обычного метода накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения, в котором импульсы накачки с круговой поляризацией осуществляют оптическую спиновую ориентацию, затем спиновая поляризация детектируется посредством измерения фарадеевского (керровского) вращения линейной поляризации зондирующих импульсов после прохождения через образец (отражения от образца). Временная эволюция спиновой поляризации (спиновая динамика) прослеживается путем изменения временной задержки между импульсами накачки и зондирования. Чтобы реализовать длительные задержки мы используем независимую селекцию импульсов как для луча накачки, так и для луча зондирования.

Для проведения экспериментов был использован Титан-сапфировый лазер (Mira900, Coherent), излучающий импульсы длительностью 1-2 пс с частотой повторения 76 МГц (период повторения $T_o = 13.1$ нс). Выходящий из лазера луч разделяется на лучи накачки и зондирования [Рис. 2.1(а)]. В луче накачки установлен электрооптический модулятор (ЭОМ) для выделения цугов из N импульсов, с расстоянием между импульсами в цуге T_o и с произвольно большой временной задержкой между цугами. Отметим, что в большинстве описанных здесь экспериментов использовался цуг из одного импульса накачки. В луче зондирования был установлен акустооптический модулятор света (АОМ) для селекции одиночных импульсов с требуемой задержкой после импульсов накачки. Отметим, что выбор типа оптического модулятора в каждом из каналов определяется лишь его характерным временем срабатыва-

ния, которое должно быть меньше T_o, можно, например, использовать в обоих каналах АОМ. ЭОМ и АОМ были синхронизированы между собой и с лазером, что позволяло им выбирать импульсы с произвольной скважностью, например, 1 из 100, так что расстояние между последовательными импульсами равно $100T_o$. При этом ключевым моментом в расширенном методе является возможность электронного изменения задержки между импульсами накачки и зондирования, выбираемыми АОМ и ЭОМ, с шагом T_o. Это осуществляется простым изменением времени задержки для триггера ЭОМ на число кратное T_o, в результате ЭОМ выбирает соответствующий импульс. Именно возможность независимой селекции импульсов и изменения между ними задержки электронным образом обеспечивает желаемый широкий временной диапазон. Для более точной подстройки задержки между импульсами накачки и зондирования в пределах T_o использовалась механическая линия задержки в луче накачки. Для этого мы использовали механический транслятор OWIS длиной 1 м с ретролефлектором. При этом свет проходил через эту линию задержки дважды, что обеспечивало максимальное расстояние, проходимое светом 4 м, соответствующее времени 13.33 нс $> T_o$. Измерения проходят следующим образом. АОМ и ЭОМ выбирают по одному импульсу, задержка между ними сканируется механически с высоким разрешением в пределах T_o. Затем задержка между импульсами, выбираемыми АОМ и ЭОМ электронным образом увеличивает на T_o и сканируется механически в пределах T_o. Этот процесс повторяется пока не будет записана вся требуемая спиновая динамика. Таким образом, динамику фарадеевского/керровского вращения можно измерить в микросекундном (и, вообще говоря, произвольном) временном диапазоне с временным разрешением ~ 2 пс, определяемым длительностью лазерного импульса. Расстояние между последовательными импульсами накачки (зондирования) в описанных ниже экспериментах составляло $80T_o$, $160T_o$ или $320T_o$, чтобы заведомо превысить характерное время затухания спиновой поляризации.

После прохождения линейно поляризованного луча зондирования через образец (или его отражения от образца) измерялось фарадеевское (керровское) вращение его поляризации. Для этого использовалась стандартная схема, описанная в разделе 1.6, с призмой Волластона и балансным детектором Nirvana. В целях синхронного детектирования и во избежание накопления ядерной поляризации, поляризация луча накачки модулировалась между σ^+ и σ^- с помощью фотоэластического модулятора (ФЭМ), работающего на частоте 84 кГц. Синхронное детектирование осуществлялось на частоте работы ФЭМ с использованием синхронного усилителя Signal Recovery. Таким образом, измерялась разность сигналов, соответствующих поляризации накачки σ^+ и σ^-. Показания синхронного усилителя передавались на компьютер, который с помощью программы, написанной в системе LabView, управлял механической

линией задержки, электронной задержкой, а также магнитным полем. Образцы с концентрациями доноров $n_{\rm D} = 5.5{\times}10^{14}$, $1.0{\times}10^{15}$, $4.0{\times}10^{15}$ см$^{-3}$ и $1.6{\times}10^{16}$ cm^{-3} изучались в геометрии на отражение (керровское вращение) с использованием длины волны лазерного излучения 819 нм, близкой к резонансу экситона, связанного на доноре. Образцы с $n_{\rm D} = 1.4 \times 10^{16}$, 3.7×10^{16} и 7.1×10^{16} см$^{-3}$ изучалась в геометрии на пропускание (фарадеевское вращение) с длиной волны лазера 825, 829 и 829 нм, соответственно.

Черная линия на Рис. 2.1(b) показывает динамику фарадеевского вращения, измеренную с помощью расширенного метода накачки–зондирования в магнитном поле $B_{\rm V} =$ 20 мТл, приложенном в геометрии Фогта (перпендикулярно лучу накачки) для образца с $n_{\rm D} = 1.4 \times 10^{16}$ см$^{-3}$. Сигнал осциллирует при изменении временной задержки, что обусловлено прецессией спина электрона на ларморовской частоте $\omega_{\rm L} = |g|\mu_{\rm B}B_{\rm V}/\hbar$, где $g = -0.44 - g$ фактор электрона в объемном GaAs [156]. Амплитуда осцилляций экспоненциально спадает со временем дефазировки спинового ансамбля $T_2^* = 230$ нс. Отметим, что расстояние между последовательностями импульсов накачки составляет $80T_{\rm o} \approx 1.05$ мкс $\gg T_2^*$. Измеренное значение T_2^* близко к значениям, полученным из экспериментов РСУ [99], Ханле [15, 157] и спинового шума [130, 151] при $B \approx 0$ для n-GaAs с похожей концентрацией доноров.

Несложно применить расширенный метод накачки–зондирования для измерения времени продольной спиновой релаксации T_1 в магнитном поле $B_{\rm F}$, приложенном в геометрии Фарадея (параллельно лучу накачки). Красной линией на Рис. 2.1(b) показана динамика фарадеевского вращения при $B_{\rm F} = 20$ мТл для того же образца с $n_{\rm D} = 1.4 \times 10^{16}$ см$^{-3}$. Сигнал демонстрирует моноэкспоненциальное затухание без осцилляций с $T_1 = 270$ нс, близким к измеренному $T_2^* = 230$ нс. Отметим, что для $B \to 0$ ожидается $T_2^* = T_1$.

2.3 Возникновение резонансного спинового усиления

Прежде чем перейти к основной теме данной главы продемонстрируем потенциал расширенного метода накачки–зондирования, который не только позволяет исследовать долгоживущую спиновую динамику, но и позволяет управлять спиновой системой, контролируя последовательность импульсов накачки. Последняя особенность может быть использована для исследования возникновения резонансного спинового усиления с увеличением числа импульсов накачки N в цуге, предшествующем зондирующему импульсу [Рис. 2.1(a)]. Задержка между импульсом зондирования и последним импульсом накачки в последовательности в этих экспериментах была равна $\Delta t = T_{\rm o} - 0.2$ нс ≈ 12.9 нс. Сигнал фарадеевского вращения измерялся в зависимости от магнитного поля $B_{\rm V}$, приложенного в геометрии Фогта

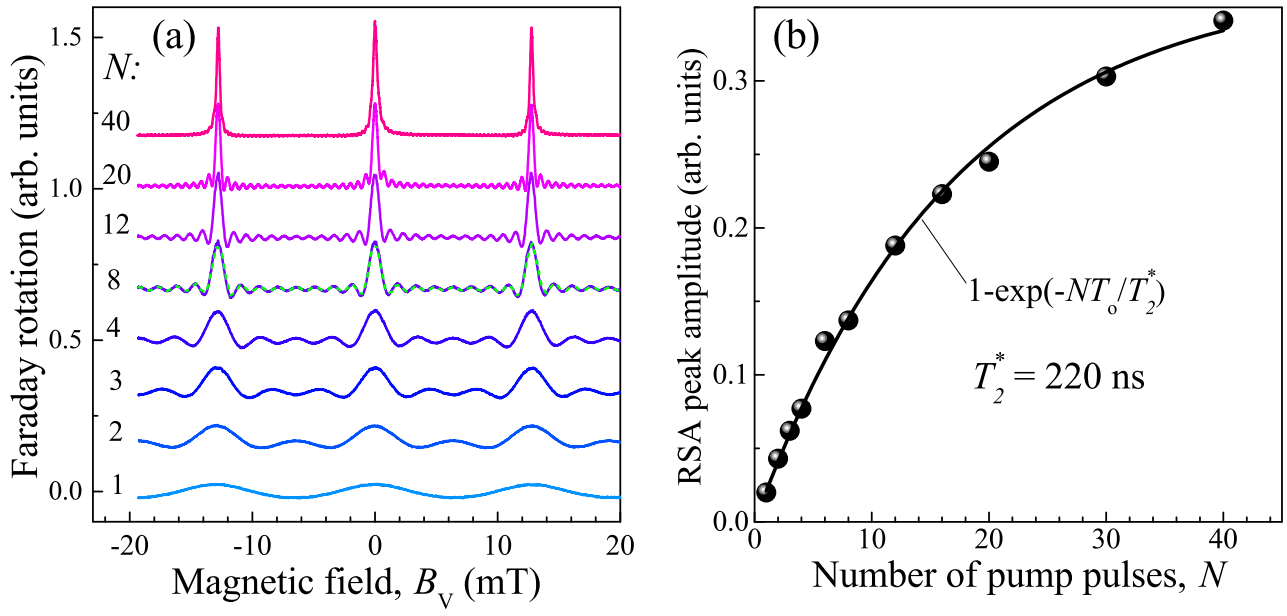


Рис. 2.2: (a) Зависимость сигнала фарадеевского вращения от магнитного поля, приложенного в геометрии Фогта, (спектр РСУ) для различного числа последовательных импульсов накачки N. Импульс зондирования отстоит на +12.9 нс от последнего импульса накачки. Пунктирная линия показывает результат расчета в соответствии с формулой (2.1). (b) Зависимость сигнала в $B = 0$ (в центральном пике РСУ) от числа импульсов накачки. Сплошная линия показывает экспоненциальную зависимость. (a),(b) Образец n-GaAs с $n_D = 1.4 \times 10^{16}$ см$^{-3}$, $T = 6$ К [A16].

(спектр РСУ) для образца с $n_D = 1.4 \times 10^{16}$ см$^{-3}$. На Рис. 2.2(a) показаны спектры РСУ для различных N. При $N = 1$ спектр РСУ характеризуется синусоидальными осцилляциями с периодом $\Delta B_V = 2\pi\hbar/(\Delta t|g|\mu_B)$. С ростом N появляются резонансы при магнитных полях $B_q = 2\pi\hbar m/(T_o|g|\mu_B) \approx m \times 13$ мТл, где m — целое число. Эти резонансы соответствуют m полным оборотам спина между последовательными импульсами накачки в цуге. С увеличением N основные резонансы РСУ увеличиваются в амплитуде и сужаются, что приводит к известному спектру с резкими пиками [99]. Между РСУ-резонансами наблюдаются $N-1$ максимумов, соответствующих интерференции спиновых прецессий, инициированных различными импульсами накачки внутри цуга. С ростом N относительная величина промежуточных максимумов ослабевает, и они исчезают при $N \to \infty$ так, что они не видны на стандартных кривых РСУ.

Спектр РСУ, возникший в результате действия N импульсов накачки может быть описан суперпозицией N затухающих колебаний:

$$S = \Delta S_0 \Sigma_{q=0}^{N-1} \cos[\omega(\Delta t + qT_o)] \exp\left(-\frac{\Delta t + qT_o}{T_2^*}\right), \qquad (2.1)$$

где ΔS_0 — спиновая поляризация, индуцированная одиночным импульсом накачки, а зависимость от магнитного поля содержится в $\omega = |g|\mu_B B_V/\hbar$. Экспериментальные зависимости прекрасно воспроизводятся уравнением (2.1), что показано на Рис. 2.2(a) зеленой пунктирной линией для $N = 8$.

Полуширина на полувысоте (HWHM) пика РСУ для $N \gg T_2^*/T_o$ насыщается при $\delta B_V = \hbar/(|g|\mu_B T_2^*)$, что дает известный способ вычисления T_2^* [99]. В нашем случае HWHM для $N \to \infty$ составляет 0.15 мТл, что соответствует $T_2^* \approx 170$ нс, что несколько ниже значения, полученного при прямом измерении [см. Рис. 2.1(b)], однако все еще в разумном согласии с ним.

Зависимость амплитуды пика РСУ от N дает еще один способ определения T_2^*. Действительно, согласно уравнению (2.1) $S(\omega = 0) \propto 1 - \exp(-NT_o/T_2^*)$, что хорошо описывает экспериментальную зависимость сигнала фарадеевского вращения в $B_V = 0$ на Рис. 2.2(b). Подгонка дает $T_2^* \approx 220$ нс, что хорошо согласуется с прямым измерением на Рис. 2.1(b).

Таким образом, метод РСУ дает правильное значение T_2^* для простой экспоненциальной дефазировки спиновой поляризации. При увеличении магнитного поля основные характеристики долгоживущей спиновой динамики также могут быть определены методом РСУ [99]. Однако, как будет показано ниже, при увеличении B_V в динамике проявляются особенности, которые затруднительно выявить непрямыми методами.

2.4 Делокализация электронов при изменении температуры и концентрации доноров

Вначале мы исследуем влияние делокализации электронов на неоднородную дефазировку спинового ансамбля, прецессирующего в магнитном поле B_V, приложенном в геометрии Фогта. На Рис. 2.3(a) показана динамика спиновой прецессии в магнитном поле различной величины для резидентных электронов в образце с низким уровнем легирования $n_D = 5.5 \times 10^{14}$ cm^{-3}, таким, что при $T = 2$ K почти все электроны локализованы на донорах. В слабых магнитных полях спиновая прецессия затухает со временем $T_2^* \approx 30$ нс, что хорошо согласуется с измерениями эффекта Ханле в этом образце [15]. Эта неоднородная дефазировка определяется разбросом частот ларморовской прецессии электронного спинового ансамбля вокруг случайных ядерных полей вблизи доноров. С ростом B_V динамика становится значительно короче, так что время дефазировки спина T_2^* быстро уменьшается до ~ 1 нс при $B_V = 500$ мТл [см. также Рис. 2.4(b), квадраты]. Это уменьшение хоро-

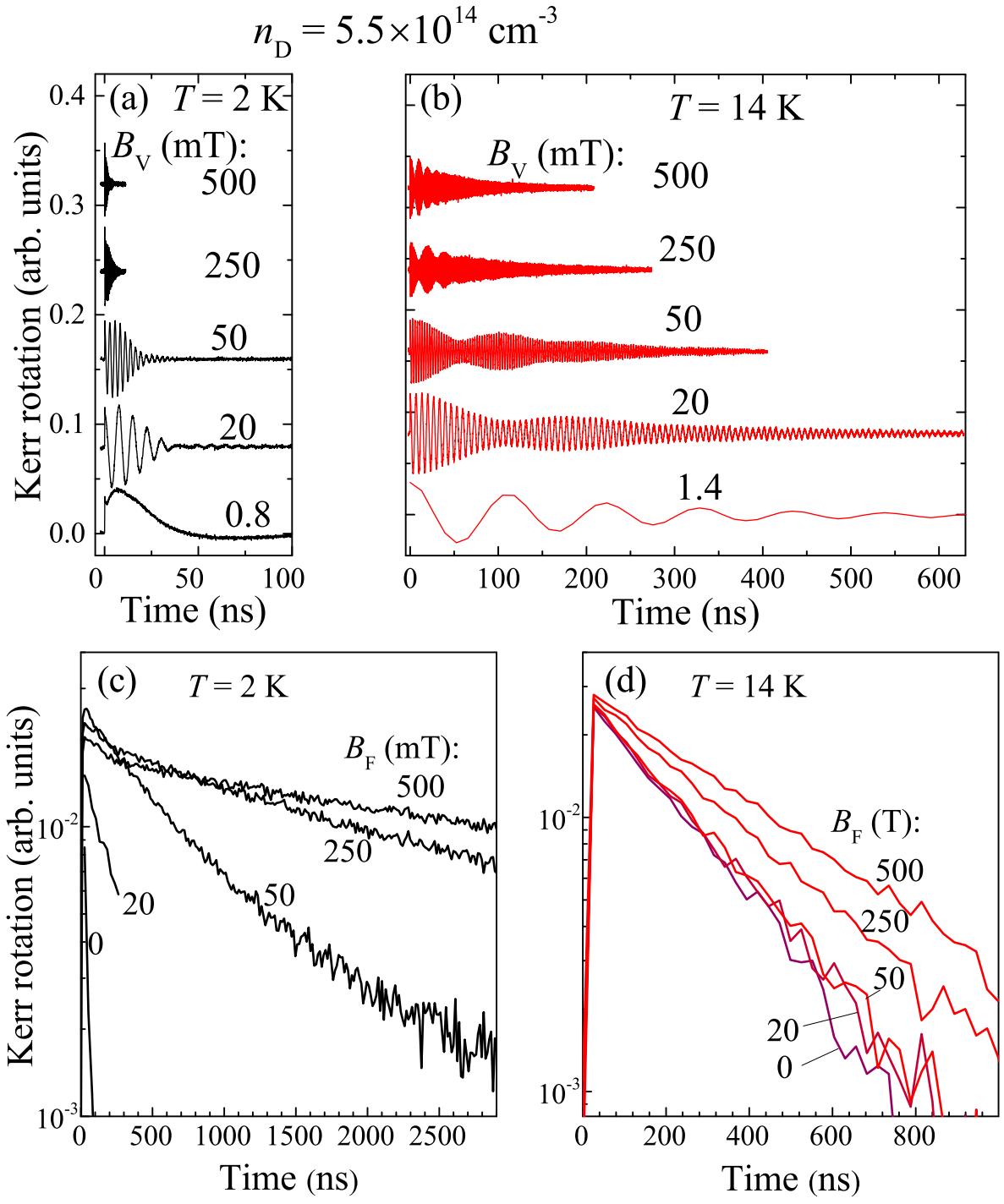


Рис. 2.3: Динамика сигнала керровского вращения при различных значениях магнитного поля, приложенного в геометрии Фогта (a),(b) и Фарадея (c),(d) при температуре $T = 2$ K (a),(c) и $T = 14$ K (b),(d) для образца n-GaAs с концентрацией доноров $n_D = 5.5 \times 10^{14}$ см$^{-3}$ [A12].

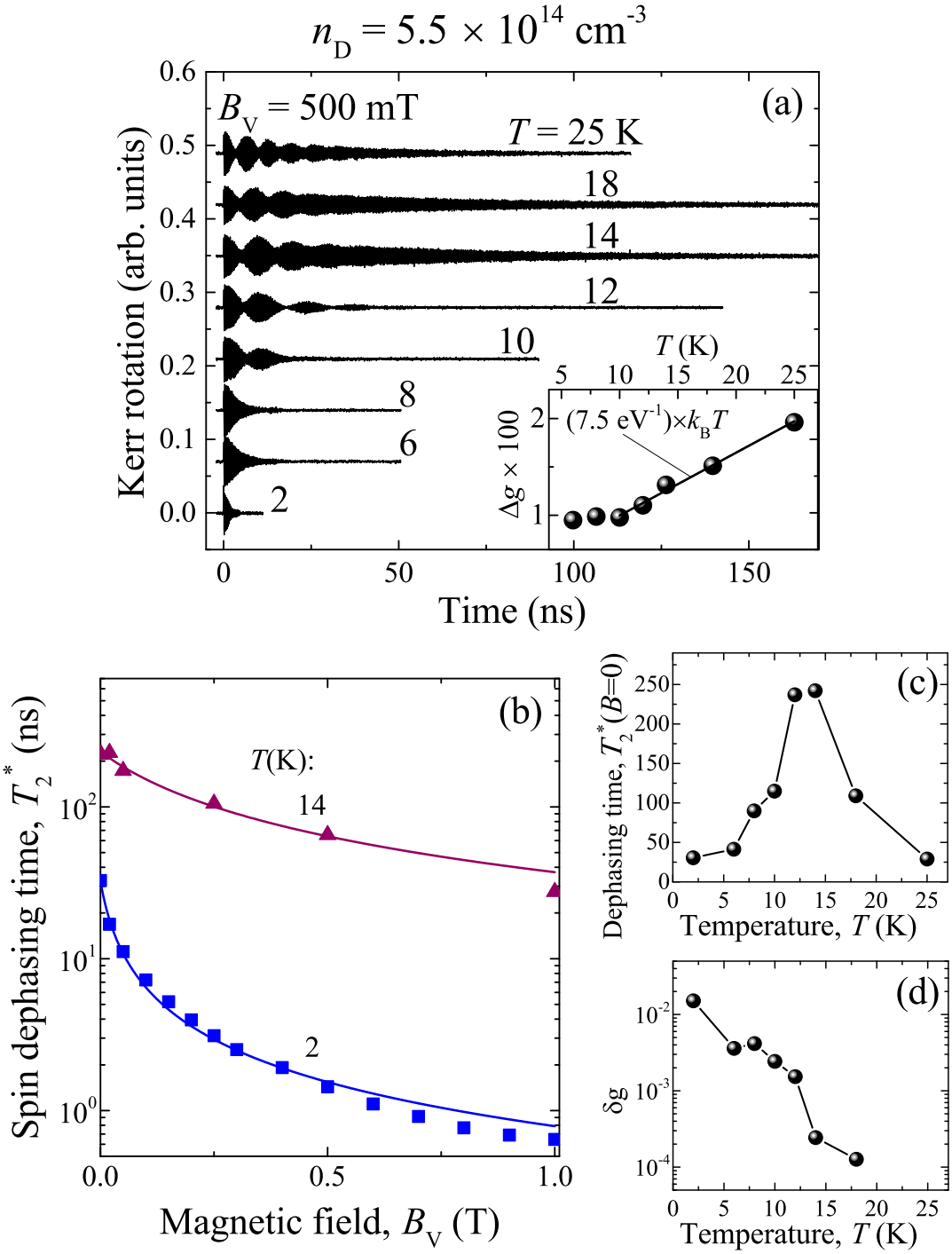


Рис. 2.4: (a) Динамика сигнала керровского вращения в магнитном поле, приложенном в геометрии Фогта, при различных температурах. Во вставке показана зависимость расщепления g фактора, приводящего к медленным биениям, от температуры; линия показывает линейную аппроксимацию экспериментальных данных. (b) Зависимость времени спиновой дефазировки T_2^* от магнитного поля для двух различных температур. Линии показывают аппроксимацию обратной зависимостью (1.5). (c) Зависимость времени спиновой релаксации в нулевом поле от температуры. (d) Зависимость разброса g факторов от температуры. (a)-(d) Образец n-GaAs с $n_D = 5.5 \times 10^{14}$ см$^{-3}$.

шо описывается уравнением (1.5), что свидетельствует о разбросе электронных g-факторов $\delta g \approx 1.4 \times 10^{-2}$. Этот разброс возникает из-за небольшого различия g факторов электронов, локализованных на различных донорах. Разброс δg можно оценить с другой стороны по разбросу энергий локализованных электронов δE, который, в свою очередь, можно оценить из ширины линии экситона, связанного на доноре, $\delta E \sim 1$ мэВ [15]. Уравнение Рот-Лакса-Цвердлинга [2] определяет универсальное соотношение между шириной запрещенной зоны и g фактором полупроводника:

$$g_{\mathrm{e}}(E_{\mathrm{g}}) = g_0 - \frac{E_{\mathrm{p}}\Delta_{\mathrm{SO}}}{E_{\mathrm{g}}(E_{\mathrm{g}} + \Delta_{\mathrm{SO}})}, \tag{2.2}$$

где $E_{\mathrm{g}} = 1.52$ эВ – ширина запрещенной зоны, $\Delta_{\mathrm{SO}} = 0.34$ эВ – спин-орбитальное расщепление валентной зоны и $E_{\mathrm{p}} = 28.9$ эВ – межзонный матричный элемент. Значения параметров для объемного GaAs взяты из работ [158, 159, 160]. Для изменения энергии $\delta E \sim 1$ мэВ соотношение (2.2) дает $\delta g \sim 10^{-2}$ в согласии с экспериментом.

В данном образце, несмотря на малую концентрацию доноров, электроны можно делокализовать, увеличив температуру решетки. Удивительно, но при $T = 14$ K [Рис. 2.3(b)] динамика характеризуется гораздо более медленной дефазировкой с $T_2^* \approx 220$ нс в слабых магнитных полях, чем при $T = 2$ K. С ростом B_{V} затухание спиновой прецессии ускоряется, но не так быстро, как при $T = 2$ K. Она также демонстрирует медленные биения с частотой, линейно возрастающей с магнитным полем, что указывает на расщепление распределения g-факторов $\Delta g \approx 1.5 \times 10^{-2}$. Это расщепление может быть связано с различными электронными подансамблями, например, локализованными и свободными электронами. Зависимость T_2^* от магнитного поля для доминирующей компоненты (подансамбля) в динамике с биениями (Рис. 2.4(b), треугольники) дает $\delta g = 2 \times 10^{-4}$ много меньше, чем при $T = 2$ K. Динамики спиновой прецессии, измеренные при различных температурах в поле $B_{\mathrm{V}} = 500$ мТл, показаны на Рис. 2.4(a). Итак, с ростом температуры время дефазировки спиновой прецессии значительно удлиняется, и в результате этого в динамике начинают проявляться биения. При температуре выше 18 K затухание динамики начинает ускоряться. Зависимость времени спиновой дефазировки в нулевом поле от температуры приведена Рис. 2.4(c). При увеличении температуры от 2 до 14 K время спиновой релаксации увеличивается от 30 до 250 нс. При дальнейшем увеличении температуры время релаксации начинает уменьшаться. Температурная зависимость разброса g-факторов для данного образца показана на Рис. 2.4(d). При увеличении температуры от 2 до 18 K δg монотонно уменьшается на два порядка, достигая значения 10^{-4}.

Увеличение времени спиновой дефазировки с ростом температуры от 2 нс при $T = 2$ К до 100 нс при $T = 14$ К (в поле $B_V = 500$ мТл) кажется весьма необычным. Это связано с динамическим сужением (motional narrowing) [161], которому способствует обменное взаимодействие [67]. Когда часть электронов становится подвижными, они эффективно передают спиновые состояния между электронами на донорах посредством обменного взаимодействия, что приводит к уменьшению времени спиновой корреляции τ_c для электронов на отдельных донорах [71]. В результате g фактор усредняется по многим донорам, что приводит к сужению общего распределения g-фактора. Вероятно, это основной механизм сужения δg при повышении температуры [Рис. 2.4(d)]. Аналогично уменьшение времени корреляции и динамическое сужение приводит к увеличению времени T_2^* в нулевом поле с ростом температуры [Рис. 2.4(c)], которое определяется разбросом частот спиновой прецессии в поле флуктуаций ядерного спина. Уменьшение T_2^* при дальнейшем увеличении температуры, по-видимому, связано с дальнейшей делокализацией электронов, увеличением их импульса и, как следствие, усилением релаксации Дьяконова-Переля [16, 15, 99].

Отметим, что частота медленных биений в спиновой динамике и соответствующий разностный g фактор зависят от температуры. Эта зависимость приведена на вставке Рис. 2.4(a). При температуре $T > 10$ К характер зависимости близок к линейному с коэффициентом $d\Delta g/k_B dT \sim 7.5$ эВ$^{-1}$. Увеличение Δg с T можно объяснить исходя из представления о подансамблях локализованных и свободных носителей заряда. С увеличением температуры сдвиг энергии как локализованных, так и свободных электронов происходит за счет температурного сужения ширины запрещенной зоны. Однако дополнительно происходит термическое уширение энергетического распределения свободных электронов и увеличение их энергии на $k_B T$. Согласно соотношению (2.2) это увеличение энергии приводит к изменению g фактора $g = -0.44 + \beta k_B T$, где $\beta = 6.3$ эВ$^{-1}$ [162], что хорошо согласуется с экспериментальным значением 7.5 эВ$^{-1}$.

Интересно сравнить динамику спиновой прецессии с динамикой продольной спиновой релаксации. На Рис. 2.3(c) показана спиновая динамика при $T = 2$ К, в условиях аналогичных Рис. 2.3(a), только магнитное B_F приложено параллельно нормали к образцу и параллельно оптической оси (геометрия Фарадея). При этом наблюдается монотонная динамика спиновой поляризации, которая может быть описана биэкспоненциальным затуханием со слабой быстрой составляющей с временем затухания ~ 300 нс и доминирующей медленной составляющей с временем затухания T_1, сильно зависящим от на B_F. Время затухания медленной компоненты T_1 увеличивается с магнитным полем в полной противоположности с тем, что происходит при поперечной спиновой дефазировке [Рис. 2.3(a)]. При увеличении

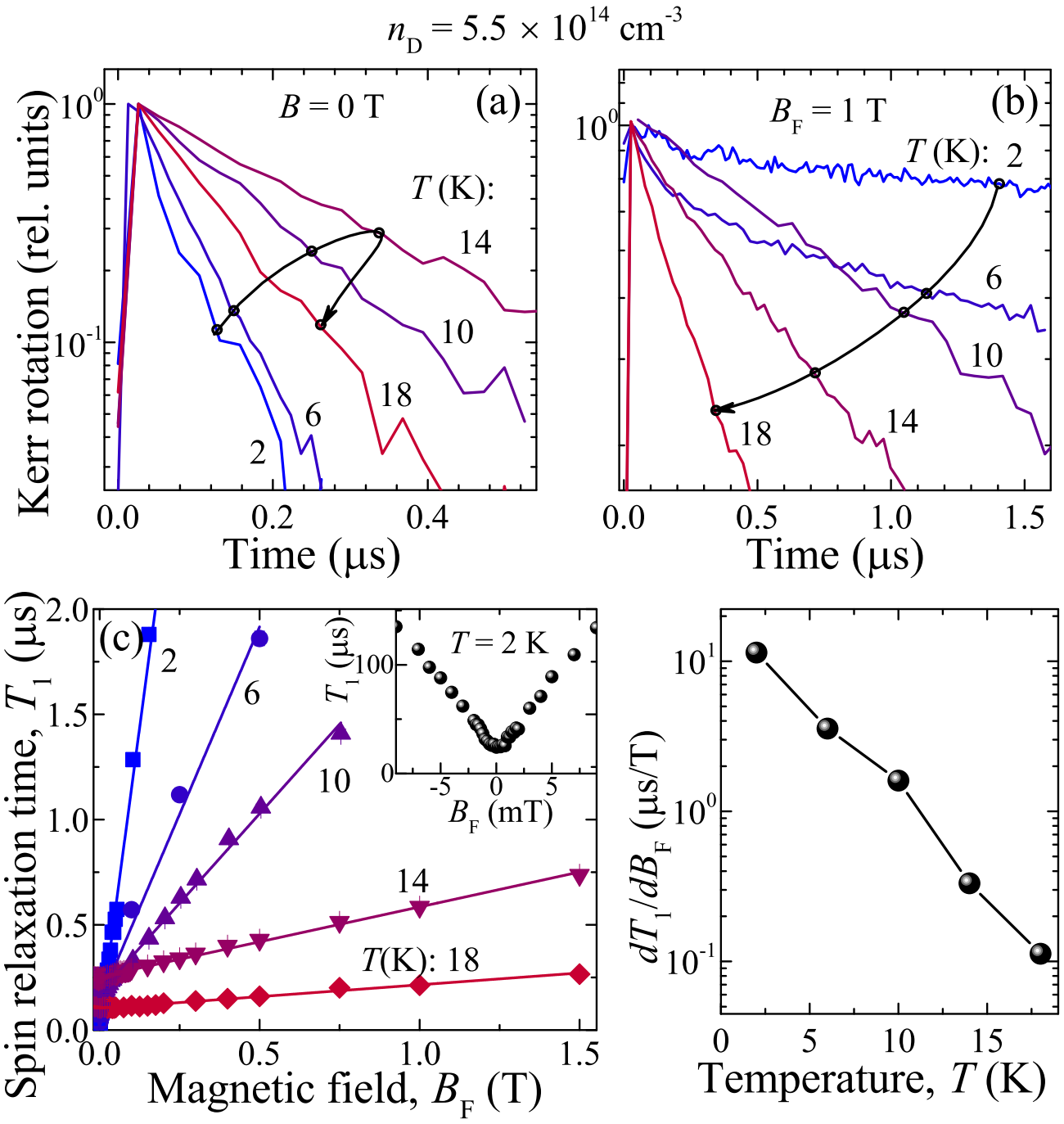


Рис. 2.5: (a) Динамика сигнала керровского вращения при различных температурах в нулевом магнитном поле. (b) Динамика сигнала керровского вращения при различных температурах в магнитном поле $B_F = 1$ Тл, приложенном в геометрии Фарадея. (c) Зависимость времени продольной спиновой релаксации T_1 от магнитного поля для различных температур. Линии показывают аппроксимацию линейной зависимостью. Во вставке показана зависимость, измеренная в районе малых полей при $T = 2$ K. (d) Зависимость наклона линейной зависимости $T_1(B_F)$ от температуры. (a)-(d) Образец n-GaAs с $n_D = 5.5 \times 10^{14}$ см$^{-3}$.

температуры до 14 K [Рис. 2.3(d)] время спиновой релаксации T_1 в магнитном поле уменьшается, в полной противоположности с увеличением T_2^* [Рис. 2.3(b)], и становится слабо зависящим от магнитного поля. Изменение спиновой динамики в нулевом поле и в продольном поле $B_\mathrm{F} = 1$ Тл с температурой представлены на Рис. 2.5(a) и 2.5(b), соответственно. Зависимости T_1 от поля при различных температурах, представленные на Рис. 2.5(c), имеют практически линейный характер в широком диапазоне полей. Отклонение от линейности наблюдается лишь в поле порядка 1 мТл [вставка на Рис. 2.5(c)]. При $T = 2$ K время T_1 увеличивается с 30 нс до 12 мкс при увеличении поля с 0 до 1 Тл. При этом коэффициент наклона линейной зависимости dT_1/dB_F убывает с температурой, что показано на Рис. 2.5(d). Этот коэффициент убывает на два порядка при изменении температуры от 2 до 18 K, что очень похоже на соответствующие убывание разброса g факторов [Рис. 2.4(d)].

Поведение времени затухания прецессии спинового ансамбля T_2^* явно антикоррелирует с поведением времени продольной спиновой релаксации T_1 при изменении магнитного поля и температуры. Эту антикорреляцию можно описать простым соотношением

$$T_1 T_2^* \approx \mathrm{const}, \tag{2.3}$$

где T_1 и T_2^* определяются для одинаковой величины магнитного поля и одинаковой температуры. Более точно это соотношение выполняется, если сделать поправку на время в нулевом поле $\tau_\mathrm{s} = T_1(B=0) = T_2^*(B=0)$ и ввести среднее геометрическое время, обозначив его τ_x:

$$\tau_\mathrm{x} = \sqrt{\frac{T_1 - \tau_\mathrm{s}}{1/T_2^* - 1/\tau_\mathrm{s}}} \approx \mathrm{const}. \tag{2.4}$$

Рисунок 2.6(a) сравнивает изменения T_1 и T_2^* с магнитным полем при двух различных температурах. При том, что эти времена в отдельности меняются на 2 порядка, изменение времени τ_x как с магнитным полем, так и с температурой весьма незначительны [Рис. 2.6(b),(c)]. Соотношение (2.3), или более точное (2.4), выглядит тем более удивительно, если вспомнить, что T_2^* определяется в основном разбросом g факторов, то есть неоднородностью в системе, тогда как считается, что T_1 определяется однородными факторами и не чувствительно к неоднородности.

Возможное решение этого парадокса было предложено К. В. Кавокиным (см. дополнительные материалы к работе [A12]). Продольная спиновая релаксация сопровождается изменением энергии электронной спиновой системы, передачей ее решетке. В работе [42] было показано, что такая передача энергии может происходить за счет оптимально расположен-

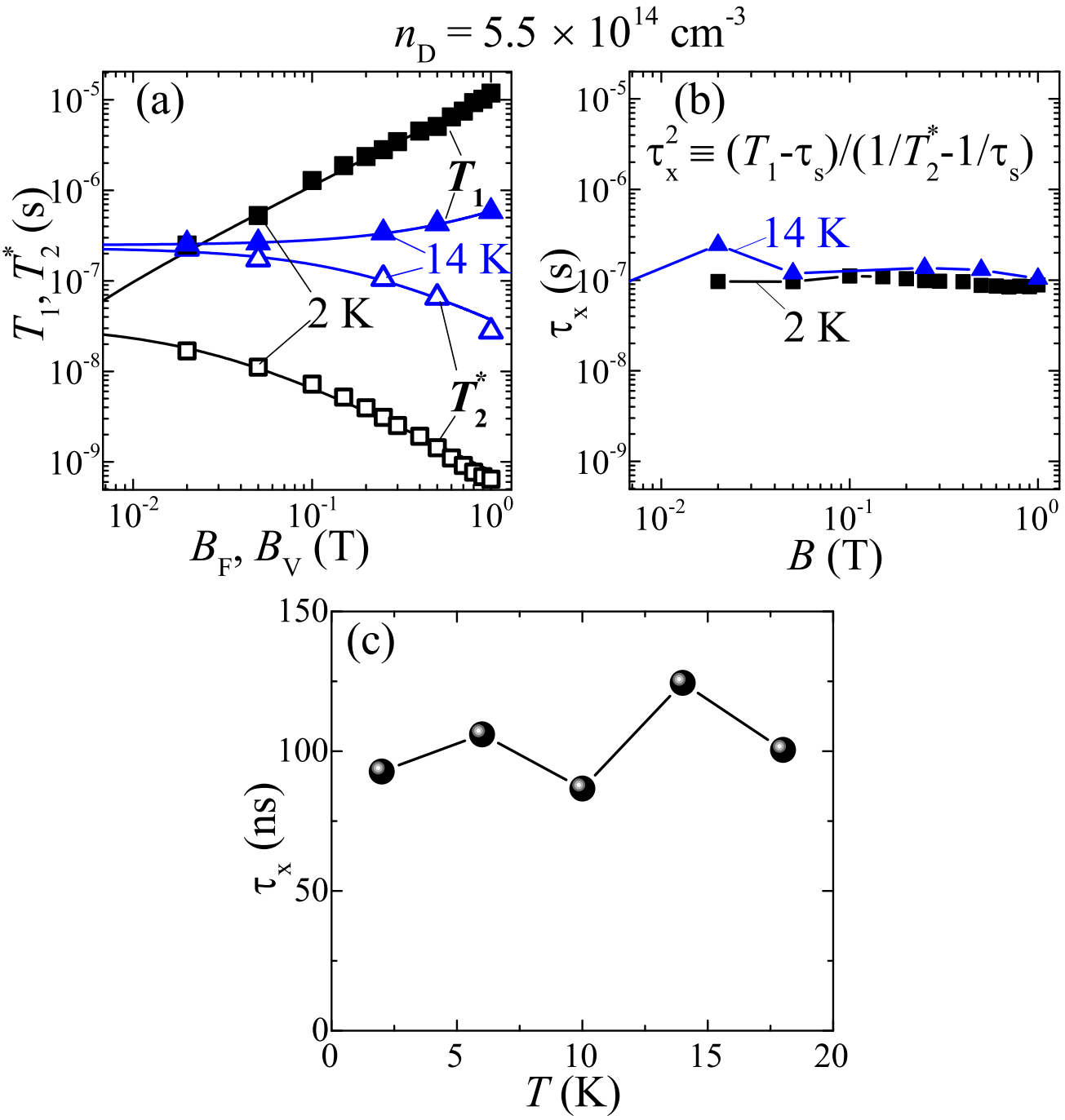


Рис. 2.6: (a) Зависимости времени продольной спиной релаксации T_1 (полные символы) и времени спиновой дефазировки T_2^* (пустые символы) от магнитного поля при $T = 2$ K и 14 K. (b) Зависимости времени $\tau_x = \sqrt{(T_1 - \tau_s)/(1/T_2^* - 1/\tau_s)}$ от магнитного поля при $T = 2$ K и 14 K, где $\tau_s = T_1(B = 0) = T_2^*(B = 0)$. (c) Зависимость времени τ_x от температуры. (a)-(c) Образец n-GaAs с $n_D = 5.5 \times 10^{14}$ см$^{-3}$ [A12].

ных (ближе $\sim$ 4-х боровских радиусов электрона на доноре) пар заряженных и нейтральных доноров. Прыжки электронов с участием фононов внутри такой пары обеспечивают передачу зеемановской энергии фононам. Для системы с локализованными электронами, передача зеемановской энергии для электронов, удаленных от такой пары, происходит за счет спиновой диффузии, которая характеризуется временем T_{D}, определяемым соотношением [163]:

$$T_{\mathrm{D}}^{-1} = 4\pi D_{\mathrm{s}} a_{\mathrm{p}} n_{\mathrm{p}}, \tag{2.5}$$

где D_{s} — коэффициент спиновой диффузии, a_{p} — эффективный радиус захвата спина оптимальной парой, n_{p} — концентрация таких пар. Радиус захвата можно оценить как среднее расстояние между донорами $n_{\mathrm{D}}^{-1/3}$, а для D_{s} можно взять выражение для спиновой диффузии, идущей через обменное взаимодействие [42]:

$$D_s = \frac{1}{3} n_{\mathrm{D}}^{-2/3} \tau_{\mathrm{c}}^{-1}, \tag{2.6}$$

где τ_{c} — время спиновой корреляции на доноре. Таким образом, для времени спиновой релаксации мы получим:

$$T_1 \approx T_{\mathrm{D}} \approx \frac{n_{\mathrm{D}}}{4 n_{\mathrm{p}}} \tau_{\mathrm{c}}. \tag{2.7}$$

Такое же соотношение, за исключением незначительного множителя $1/4$, было получено в работе [42]. Время корреляции τ_{c} характеризует время передачи спина электрона на доноре другим электронам на соседних донорах и определяется как энергией обменного взаимодействия J, так и спектральной плотностью мощности флуктуирующих полей, действующих на спин электрона за счет его обменного взаимодействия с соседями [164]. Таким образом, чем ближе частоты спиновой прецессии для электронов на разных донорах, тем быстрее будет происходить передача спина, то есть спиновая диффузия, тем быстрее спин дойдет до оптимальной пары, где произойдет его релаксация. Таким образом, τ_{c} и T_1 определяются разбросом частот ларморовской прецессии, который в магнитном поле в рассматриваемой системе определяется разбросом g факторов δg:

$$\frac{1}{\tau_{\mathrm{c}}} \approx \frac{\langle J^2 \rangle}{\hbar^2} \frac{\hbar}{\delta g \mu_{\mathrm{B}} B} = \frac{\hbar}{\tau_{\mathrm{c}0}^2 \, \delta g \mu_{\mathrm{B}} B}, \tag{2.8}$$

где, $\tau_{c0} = \hbar / \sqrt{\langle J^2 \rangle}$ — время корреляции при нулевом магнитном поле и температуре. В итоге получаем:

$$T_1 \approx \frac{n_{\mathrm{D}}}{4 n_{\mathrm{p}}} \tau_{\mathrm{c}0}^2 \frac{\delta g \mu_{\mathrm{B}} B}{\hbar}. \tag{2.9}$$

Таким образом, $T_1 \propto B$ в соответствии с экспериментом. Принимая во внимание уравнение (1.5), которое хорошо описывает экспериментальную зависимость $T_2^*(B_\mathrm{V})$ в поперечном магнитном поле, получаем

$$\tau_\mathrm{x} \approx \sqrt{T_1 T_2^*} \approx \sqrt{\frac{n_\mathrm{D}}{4n_\mathrm{p}}}\tau_{\mathrm{c}0}. \tag{2.10}$$

Время корреляции $\tau_{\mathrm{c}0}$ было рассчитано в работе [15]. Для $n_\mathrm{D} = 5.5 \times 10^{14}$ см$^{-3}$, $\tau_{\mathrm{c}0} \approx 10$ нс. Экспериментальное значение $\tau_\mathrm{x} \approx 100$ нс [Рис. 2.6(c)] соответствует концентрации оптимальных пар $n_\mathrm{p} \approx 2.5 \times 10^{-3} n_\mathrm{D}$, что находится в разумном согласии с теоретической оценкой [42].

Таким образом, данная модель показывает, что и время T_1 определяется неоднородностью системы, разбросом частот спиновой прецессии, так как от него зависит скорость спиновой диффузии к оптимальным парам, на которых происходит релаксация. Отметим, что при спиновой диффузии важно взаимодействие между спинами, делокализация спинов, тогда как сами электроны (заряды) могут быть локализованными.

Сравним спиновую динамику в поперечном магнитном поле, приложенном в геометрии Фогта для различных образцов [Рис. 2.7]. Для образца с увеличенной концентрацией доноров $n_\mathrm{D} = 1 \times 10^{15}$ см$^{-3}$, однако все еще ниже MIT, при низкой температуре в слабом магнитном поле $T_2^* \approx 50$ нс, что несколько больше, чем $T_2^* \approx 30$ нс для образца с низкой концентрацией. При увеличении магнитного поля динамика, естественно, укорачивается за счет разброса g факторов, который составляет $\delta g \approx 5 \times 10^{-3}$, что меньше, чем для образца с $n_\mathrm{D} = 5.5 \times 10^{14}$ см$^{-3}$ при $T = 2$ К. При увеличении температуры до 14 К картина спиновой динамики кардинально не меняется. Незначительно укорачивается время T_2^*, однако δg остается неизменным. Зависимости $T_2^*(B = 0)$ и δg от температуры приведены на правой панели Рис. 2.7. Они подтверждают описанные выше наблюдения: $T_2^*(B = 0)$ слабо убывает с температурой, что, по-видимому, связано с увеличением импульса электронов и, как следствие, усилением релаксации Дьяконова-Переля [15, 16, 99]. При этом δg от температуры не зависит. По-видимому, при повышенной концентрации доноров в данной системе обменное взаимодействие между электронами на донорах уже достаточно эффективно способствует динамическому сужению, так что уже при низкой температуре T_2^* в малом поле больше, а δg меньше, чем для образца с низкой концентрацией, а при увеличении температуры T_2^* и δg меняются слабо. Такая же тенденция прослеживается при дальнейшем увеличении концентрации доноров. Для образца с $n_\mathrm{D} = 3.7 \times 10^{16}$ см$^{-3}$, выше MIT, при $T = 2$ К $T_2^*(B = 0) \approx 100$ нс, то есть еще больше, а $\delta g \approx 1 \times 10^{-3}$, еще меньше. С увеличением температуры T_2^* также незначительно уменьшается. Интересно, что δg меняется более заметно, чем для образца с

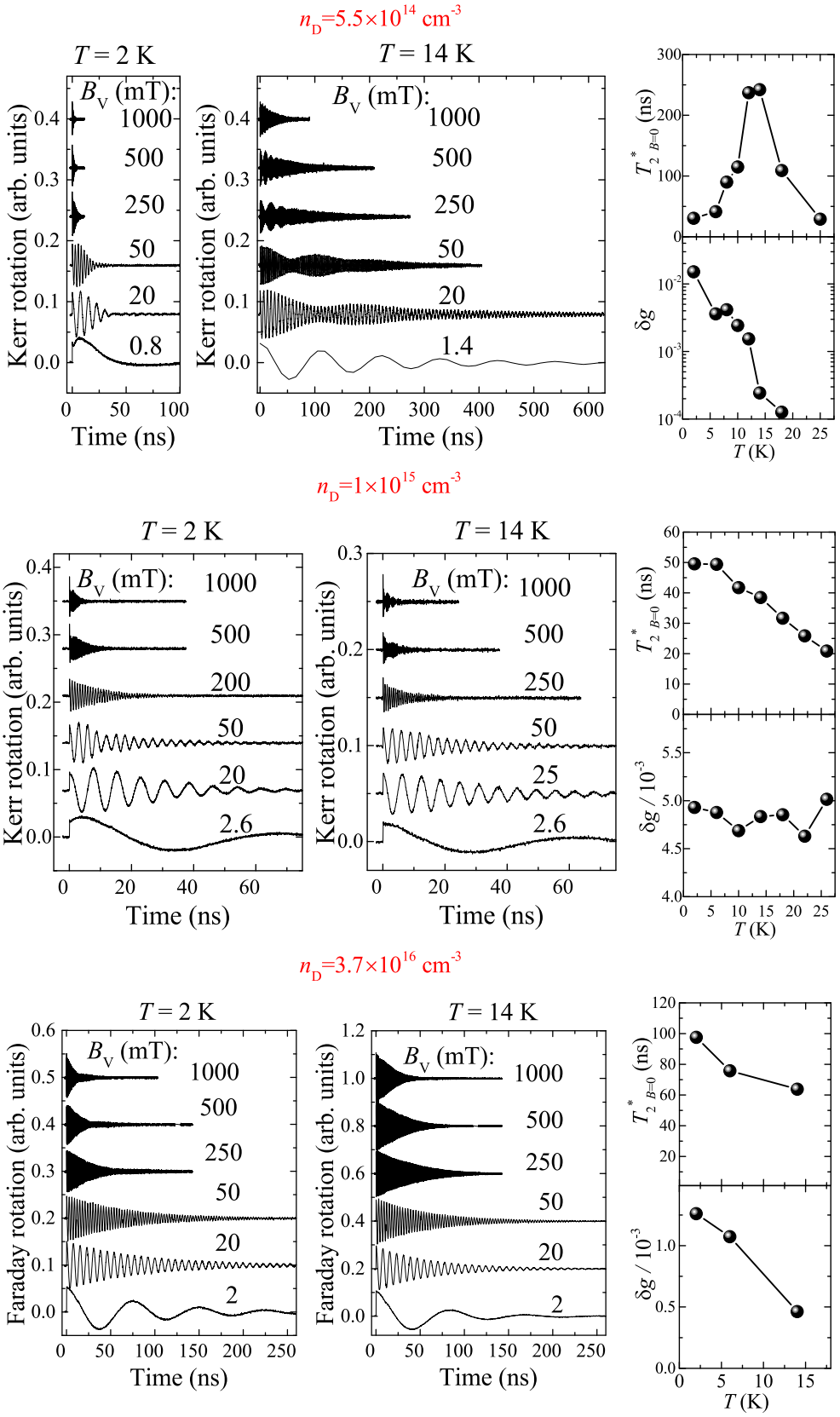


Рис. 2.7: Динамика спиновой поляризации при различных магнитных полях, приложенных в геометрии Фогта, и различных температурах, а также зависимости времен спиновой релаксации в нулевом поле и разброса g факторов от температуры. Данные приведены для трех образцов n-GaAs с различными концентрациями доноров.

промежуточной концентрацией, уменьшаясь с 1×10^{-3} при 2 K до 0.5×10^{-3} при 14 K.

Далее сравним спиновую динамику в продольном магнитном поле, приложенном в геометрии Фарадея для различных образцов. На Рис. 2.8 показаны динамики спиновой релаксации в нулевом поле для различных температур и для образцов с различными концентрациями доноров (левая панель), продольные спиновые динамики в поле $B_{\mathrm{F}} = 1$ Тл (средняя панель) и зависимости времени продольной спиновой релаксации T_1 от магнитного поля (правая панель). Поведение времени спиновой релаксации при $B = 0$ уже обсуждалось: оно возрастает с температурой, достигает максимума и убывает для образца с наименьшей концентрацией доноров. Для образцов с повышенной концентрацией доноров $T_1(B = 0)$ монотонно убывает с температурой. В ненулевом магнитном поле при низких температурах ($T \lesssim 10$ K) продольная спиновая динамика для образцов с n_{D} ниже MIT характеризуется двумя компонентами. Время затухания быстрой компоненты слабо зависит от магнитного поля, тогда как зависимость соответствующего времени для медленной компоненты достаточно сильная. Биэкспоненциальный характер продольной спиновой релаксации был предсказан теоретически в работе [42] для ансамбля взаимодействующих электронов, связанных на донорах. При этом быстрая компонента соответствует установлению внутреннего равновесия в электронном спиновом ансамбле, тогда как медленная компонента отражает передачу зеемановской энергии кристаллической решетки, и именно эта компонента определяет время T_1. Также прослеживается явная закономерность: при увеличении концентрации доноров зависимость T_1 от B_{F} и T ослабевает. Лишь для образцов с наименьшими концентрациями доноров $n_{\mathrm{D}} = 5.5 \times 10^{14}$ см$^{-3}$ и 1×10^{15} см$^{-3}$ наблюдается сильная зависимость T_1 от B_{F}, так что T_1 составляет десятки наносекунд в нулевом поле и единицы микросекунд в $B_{\mathrm{F}} = 1$ Тл. Эта зависимость ослабевает с увеличением температуры. Для образцов же с большей концентрацией зависимости T_1 от B_{F} достаточно слабые и T_1 лежит в субмикросекундном диапазоне. Отметим, что при n_{D} вблизи или выше MIT, либо при повышенной температуре времена T_1 и T_2^* имеют близкие значения.

На Рис. 2.9 приведены времена продольной спиновой релаксации при $B_{\mathrm{F}} = 0$ и 1 T в зависимости от концентрации доноров [Рис. 2.9(a)] и температуры [Рис. 2.9(b)]. Рисунок 2.9(a) также включает литературные данные для T_1 при 1 T (треугольники), измеренные методами накачки–зондирования с измерением фотолюминесценции с поляризационным разрешением [17, 18, 20]. Время T_1 при $B_{\mathrm{F}} = 1$ T монотонно убывает при изменении n_{D} на три порядка без изменения характера зависимости при переходе MIT. С другой стороны, T_1 в нулевом магнитном поле сначала увеличивается с увеличением n_{D}, будучи значительно меньше $T_1(B_{\mathrm{F}} = 1$ Тл). После достижения порога MIT $T_1(B = 0)$ сравнивается с $T_1(B_{\mathrm{F}} = 1$ Тл) и

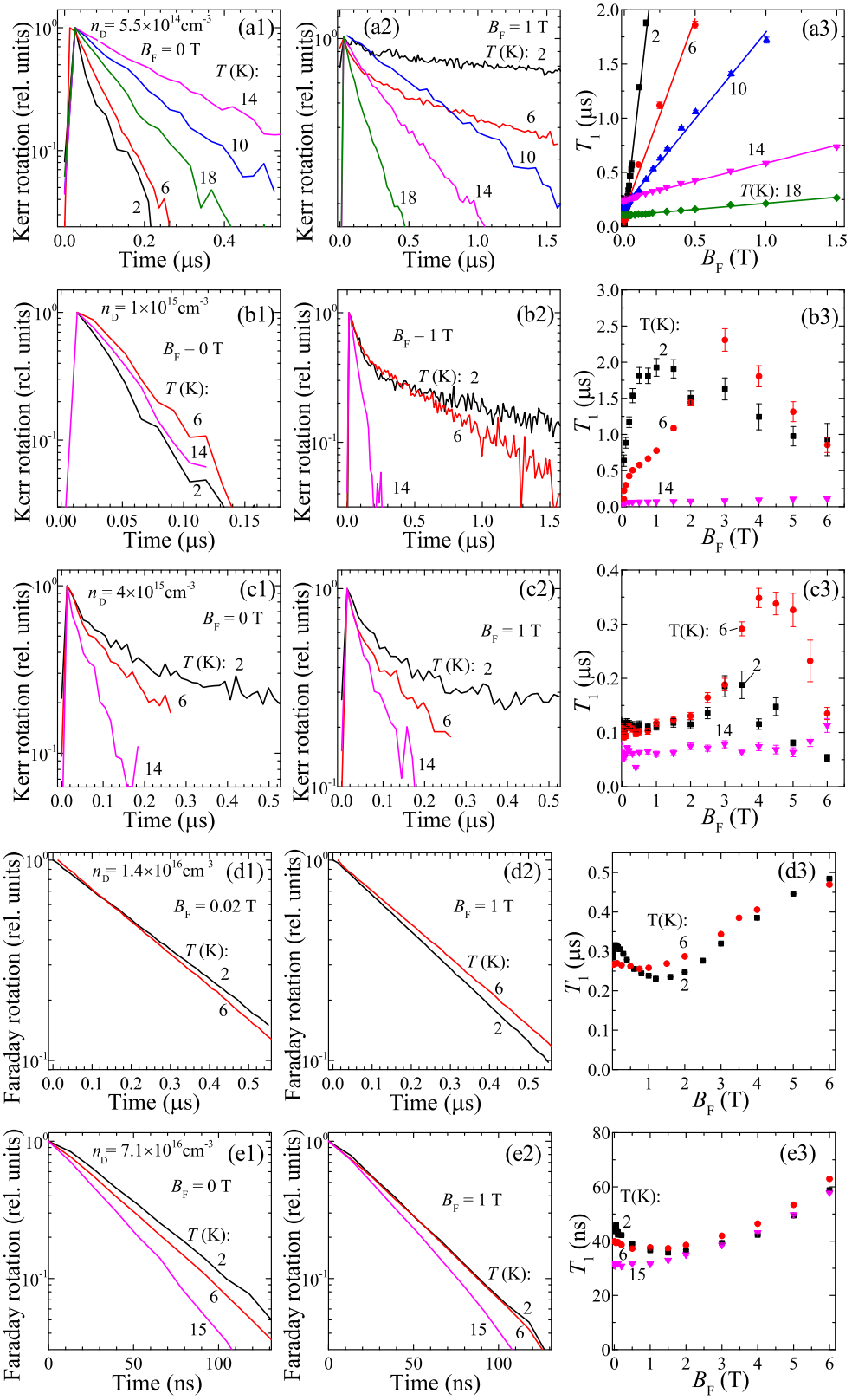


Рис. 2.8: Динамика спиновой поляризации при различных температурах в нулевом магнитном поле (левые панели) и в поле $B_F = 1$ Тл, приложенном в геометрии Фарадея (средняя панель), а также зависимости времени продольной спиновой релаксации T_1 от магнитного поля при различных температурах (правые панели). Данные приведены для пяти образцов n-GaAs с различными концентрациями доноров.

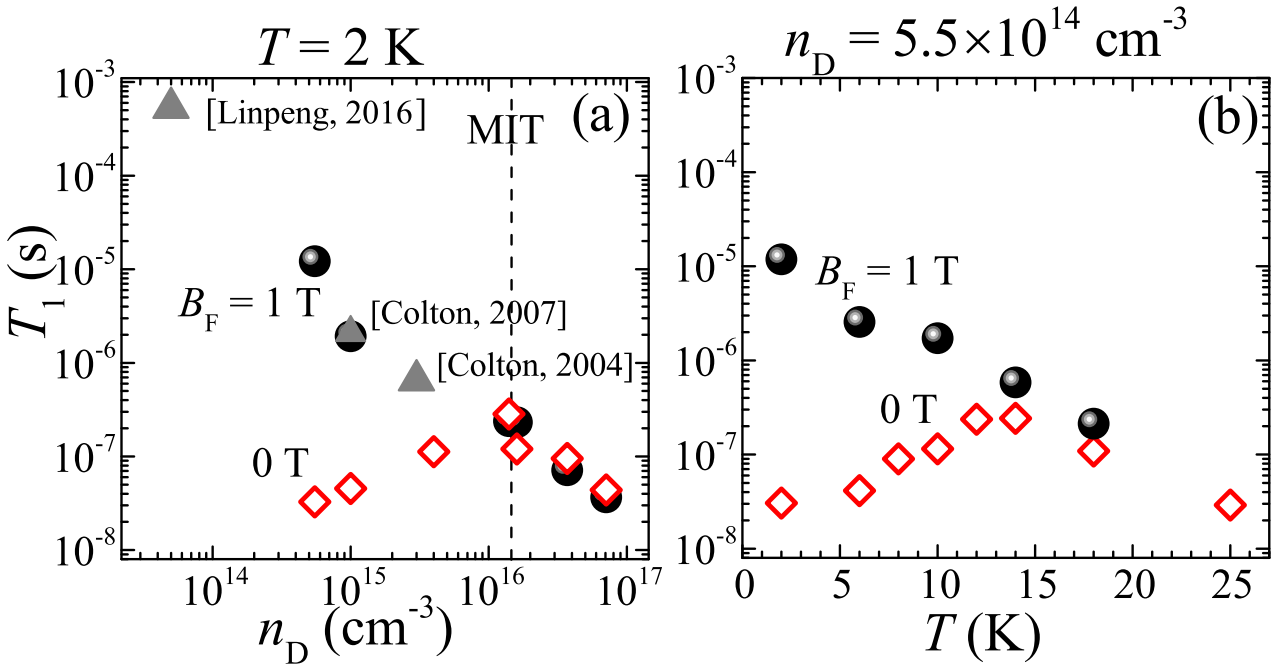


Рис. 2.9: (a) Зависимость времени продольной спиновой релаксации T_1 от концентрации доноров в образце n-GaAs в нулевом магнитном поле (открытые символы) и в поле $B_F = 1$ Тл (полные символы) при $T = 2$ K. Треугольниками показаны данные из работ [17, 18, 20]. (b) Зависимость времени продольной спиновой релаксации T_1 от температуры в нулевом магнитном поле (открытые символы) и в поле $B_F = 1$ Тл (полные символы) для образца n-GaAs с $n_D = 5.5 \times 10^{14}$ см$^{-3}$ [A12].

начинает уменьшаться. То есть наблюдается “развилка” с узлом на пороге MIT. Описанное поведение относится и к зависимости T_1 от температуры [Рис. 2.9(b)] для образца с низкой концентрацией доноров 5.5×10^{14} см$^{-3}$, и указывает на начало делокализации при 14 K. Выше этой температуры T_1 слабо зависит от магнитного поля. Интересно, что увеличение концентрации доноров от $\sim 5 \times 10^{14}$ до $\sim 10^{17}$ см$^{-3}$ при $T = 2$ K [Рис. 2.9(a)] оказывает такое же влияние на спиновую релаксацию, как и повышение температуры от 2 до 25 K при $n_D = 5.5 \times 10^{14}$ см$^{-3}$ [Рис. 2.9(b)], указывая на то, что T_1 имеет сходные зависимости от $\ln(n_D)$ и от T.

2.5 Влияние слабой локализации на спиновую динамику электронов в объемном n-GaAs

В предыдущих разделах мы видели, что спиновая релаксация электронов в полупроводниках сильно зависит от того, являются ли электроны свободными или локализованными [15, A12]. При переходе металл–изолятор спиновая релаксация изменяется так же резко, как и проводимость (Рис. 2.9) [A12, 75]. Действительно, в диэлектрической фазе как прово-

димость, так и спиновая релаксация критически зависят от перекрытия волновых функций электронов связанных на донорах при низких температурах и от числа делокализованных электронов при более высоких температурах. В металлической фазе, в полупроводниках без центра инверсии, к которым относится и GaAs, спиновая релаксация определяется спин-орбитальным взаимодействием [16] и, как и проводимость, спиновая релаксация подавляется процессами рассеяния электронов. Скорость спиновой релаксации тесно связана с коэффициентом диффузии электронов [42, 165, 153], так что обычно ожидается, что явления переноса заряда будут проявляться и в процессах спиновой релаксации [110, 36, 38, 39]. Ситуация становится еще более интересной вблизи MIT, где начинают доминировать квантовые эффекты [166, 43].

Ограничения экспериментальных методов, связанные с достижимым временным разрешением, доступным временным диапазоном или магнитным полем, в котором тот или иной метод могут быть применены, до сих пор делали невозможным подробное исследование связи между диффузией электронов и спиновой релаксацией в магнитном поле вблизи MIT. С другой стороны, транспортные свойства полупроводников, напрямую дающие информацию о диффузии электронов, довольно легко доступны в эксперименте. В слабых магнитных полях низкотемпературное магнетосопротивление является отрицательно из-за *эффекта слабой локализации*: магнитное поле разрушает фазовую когерентность интерферирующих электронных траекторий и увеличивает коэффициент диффузии электронов [167, 168, 169, 170, 171, 172, 173, 174]. Спин-орбитальное взаимодействие сильно влияет на магнетосопротивление в слабых магнитных поля, приводя к положительному магнетосопротивлению, то есть к антилокализации, если спиновая когерентность электрона теряется быстрее, чем его фаза [167]. При этом также было предсказано появление слабой локализации/антилокализации в спиновой динамике [43, 44], которое до сих пор не было обнаружено экспериментах.

В данном разделе мы, как и в предыдущих, будем изучать спиновую динамику n легированного GaAs, однако сфокусируемся на подробном исследовании спиновой релаксации в образцах с концентрацией доноров $n_{\mathrm{D}} = 3.7 \times 10^{16}$ см$^{-3}$ и 7.1×10^{16} см$^{-3}$ несколько выше перехода MIT. Уже на Рис. 2.8(d3) и 2.8(e3) видно, что в зависимости времени продольной спиновой релаксации T_1 от магнитного поля B_{F} есть аномалия, которая не наблюдается для образцов с более низкой концентрацией: убывание T_1 с B_{F} в малых полях. При этом классическая теория [175] предсказывает рост T_1 с ростом поля в основном за счет циклотронного движения свободных носителей заряда. Мы подробно исследуем данную аномалию и покажем, что она связана со слабой локализацией электронов [A8]. Из транспортных измерений,

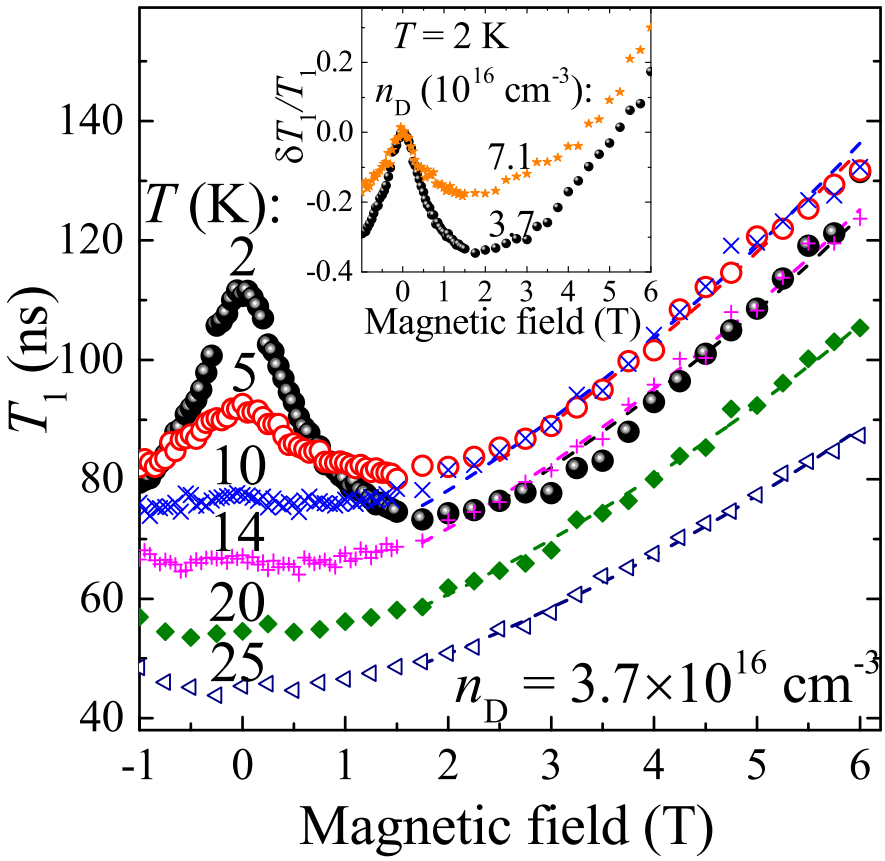


Рис. 2.10: Зависимости времени продольной спиновой релаксации T_1 от магнитного поля при различных температурах для образца n-GaAs с $n_D = 3.7 \times 10^{16}$ см$^{-3}$. Пунктирные линии показывают аппроксимацию экспериментальных данных зависимостью (2.12). Во вставке показаны магнитополевые зависимости относительного изменения времени продольной спиновой релаксации $T_1(B_F)/T_1(0) - 1$ для двух образцов n-GaAs с различными концентрациями доноров при $T = 2$ К [A8].

проведенных на тех же образцах, мы увидим, что отрицательное магнетосопротивление коррелирует с аномальной зависимостью T_1 от магнитного поля.

В экспериментах магнитное поле было приложено в геометрии Фарадея, вдоль луча накачки и нормали к образцу. Динамика продольной спиновой релаксации для образцов с концентрацией выше порога MIT является монотонной и моноэкспоненциальной [Рис. 2.8(d2), 2.8(e2)], позволяя определить время продольной спиновой релаксации T_1. Зависимость T_1 от магнитного поля показана на Рис. 2.10 при различных температурах для образца с $n_D = 3.7 \times 10^{16}$ см$^{-3}$. Из рисунка видно, что при $T = 2$ К с ростом магнитного поля T_1 сначала уменьшается, достигает минимума, а затем увеличивается. Минимум в зависимости $T_1(B_F)$ наблюдается также для образца с еще большей концентрацией носителей $n_D = 7.1 \times 10^{16}$ см$^{-3}$ (вставка на Рис. 2.10), однако он становится менее выраженным. Интересно, что с ростом

температуры минимум становится менее выраженным из-за уменьшения значения T_1 в нулевом поле, а при температурах $T \gtrsim 14$ K минимум не наблюдается. Уменьшение T_1 с ростом магнитного поля является неожиданным и противоречит существующим теориям спиновой релаксации свободных электронов в полупроводниках [16, 175, 153]. Для объяснения данного явления рассмотрим, существующие модели, описывающие спиновую релаксацию в подобных системах.

Как уже было сказано, в GaAs, находящемся в металлической фазе, спиновая релаксация контролируется механизмом Дьяконова-Переля [14]. Спин электрона прецессирует с частотой $\mathbf{\Omega_k}$ вокруг эффективного спин-орбитального поля Дрессельгаус [176], возникающего при движении электрона и зависящего от величины и направления его импульса. Столкновения электрона с примесями рандомизируют направление его импульса и поля Дрессельгаус, замедляя, таким образом, отклонение спина от его начальной ориентации, то есть спиновую релаксацию. Действительно, между актами рассеяния спин электрона поворачивается на малый угол $\Delta\varphi \sim \Omega_{\mathbf{k}}\tau_p$, а процессы рассеяния изменяют волновой вектор $\mathbf{k}$ и, соответственно, частоту прецессии спина $\mathbf{\Omega_k}$, уменьшая кумулятивный угол поворота спина. Здесь τ_p – это время релаксации импульса (время между актами рассеяния). Таким образом, механизм замедления спиновой релаксации за счет столкновений имеет такую же природу, как и упоминавшийся в предыдущем разделе механизм динамического сужения [161]. Усредненный квадрат угла отклонения спина от его начального направления за время t можно оценить как $<\varphi^2> \sim \Delta\varphi^2 t/\tau_p \sim \Omega_k^2\tau_p t$, где Ω_k – модуль $\mathbf{\Omega_k}$, усредненный по направлению $\mathbf{k}$. Время, за которое этот угол становится значительным $<\varphi^2> \sim 1$, дает оценку времени спиновой релаксации T_1 в нулевом магнитном поле. Таким образом, $T_1(0) \sim 1/\tau_p\Omega_k^2$. Более детальное рассмотрение с учетом зависимости $\mathbf{\Omega_k}$ от $\mathbf{k}$ и предположения о том, что электронный газ является вырожденным, дает [16]

$$T_1(0) = \frac{105}{32\alpha^2}\frac{\hbar^2 E_{\mathrm{g}}}{E_{\mathrm{F}}^3\tau_3}, \tag{2.11}$$

где E_{F} — энергия Ферми электрона, $E_{\mathrm{g}} = 1.52$ эВ — ширина запрещенной зоны, $\alpha \approx 0.063$ — безразмерная постоянная Дрессельхаус для GaAs, пересчитанная из данных в работах [177, 178] и τ_3 – время релаксации третьей угловой гармоники распределения электронов по импульсу. С точностью до числового множителя τ_3 равно времени рассеяния электрона, то есть времени релаксации его импульса τ_p.

Аналогично процессам рассеяния, подавление спиновой релаксации имеет место за счет циклотронного движения электрона во внешнем магнитном поле. Действительно, поле инду-

цирует поворот скорости электрона и волнового вектора $\mathbf{k}$, что приводит к повороту эффективного магнитного поля $\mathbf{\Omega_k}$. Таким образом, магнитное поле действует как дополнительный источник рассеяния и замедляет спиновую релаксацию [175, 179]. Зависимость T_1 от магнитного поля была рассчитана в работе [175]:

$$\frac{T_1(B_\mathrm{F})}{T_1(0)} = \frac{[1+(\omega_c\tau_3)^2][1+9(\omega_c\tau_3)^2]}{1+6(\omega_c\tau_3)^2} \approx 1+4\omega_c^2\tau_3^2, \tag{2.12}$$

где $\omega_\mathrm{c} = eB_\mathrm{F}/m_\mathrm{e}c$ – циклотронная частота, m_e – масса электрона. Последнее приближенное равенство в уравнении (2.12) выполняется при $\omega_c\tau_3 \ll 1$. Уравнение (2.12) наглядно демонстрирует увеличение времени спиновой релаксации T_1 с ростом магнитного поля. Это выражение с независимым от температуры $\tau_3 \approx 40$ fs описывает экспериментальные данные при $B_\mathrm{F} \gtrsim 2$ T (штриховые линии на Рис. 2.10). Из значения T_1, экстраполированного в $B = 0$, в соответствии с формулой (2.11) мы получаем $\tau_3 \approx 40$ фс, почти такое же, как значение, полученное выше из кривизны зависимости $T_1(B_\mathrm{F})$.

Классическая теория механизма спиновой релаксации Дьяконова-Переля, выраженная уравнениями (2.11) и (2.12), а также учет межэлектронных столкновений [180, 181] не может объяснить значительное уменьшение времени спиновой релаксации T_1 в достаточно слабых магнитных полях $B_\mathrm{F} \lesssim 1$ T и при низких температурах $T \lesssim 14$ K. Фактически при выводе уравнений (2.11) и (2.12) движение электрона предполагается классическим, то есть выполняется неравенство $E_\mathrm{F}\tau_p/\hbar \gg 1$. При относительно низких плотностях электронов $E_\mathrm{F}\tau_p/\hbar$ лишь немного превышает единицу, и важную роль начинают играть квантовые эффекты. В частности, для электрона, движущегося через неупорядоченную среду, становится существенной интерференция между классическими траекториями. Для электронов, движущихся по круговой траектории по и против часовой стрелки через одну и ту же конфигурацию примесей, фазы, приобретаемые на этих двух путях, равны. В результате волновые функции электрона, соответствующие этим двум путям конструктивно интерферируют, что приводит к когерентному обратному рассеянию. В результате увеличивается эффективность рассеяния на примесях и замедляется распространение электронов. Это эффект *слабой локализации*, которая возникает даже в системах с подвижными электронами. Важно отметить, что магнитное поле разрушает конструктивную интерференцию за счет дополнительной фазы, пропорциональной потоку поля через замкнутую траекторию, так что ее знак зависит от направления обхода этой траектории [172, 173, 174, 182, 167]. Связь наблюдаемой в нашем эксперименте аномалии в зависимости от $T_1(B_\mathrm{F})$ со слабой локализацией была высказана и теоретически обоснована М. М. Глазовым и К. В. Кавокиным.

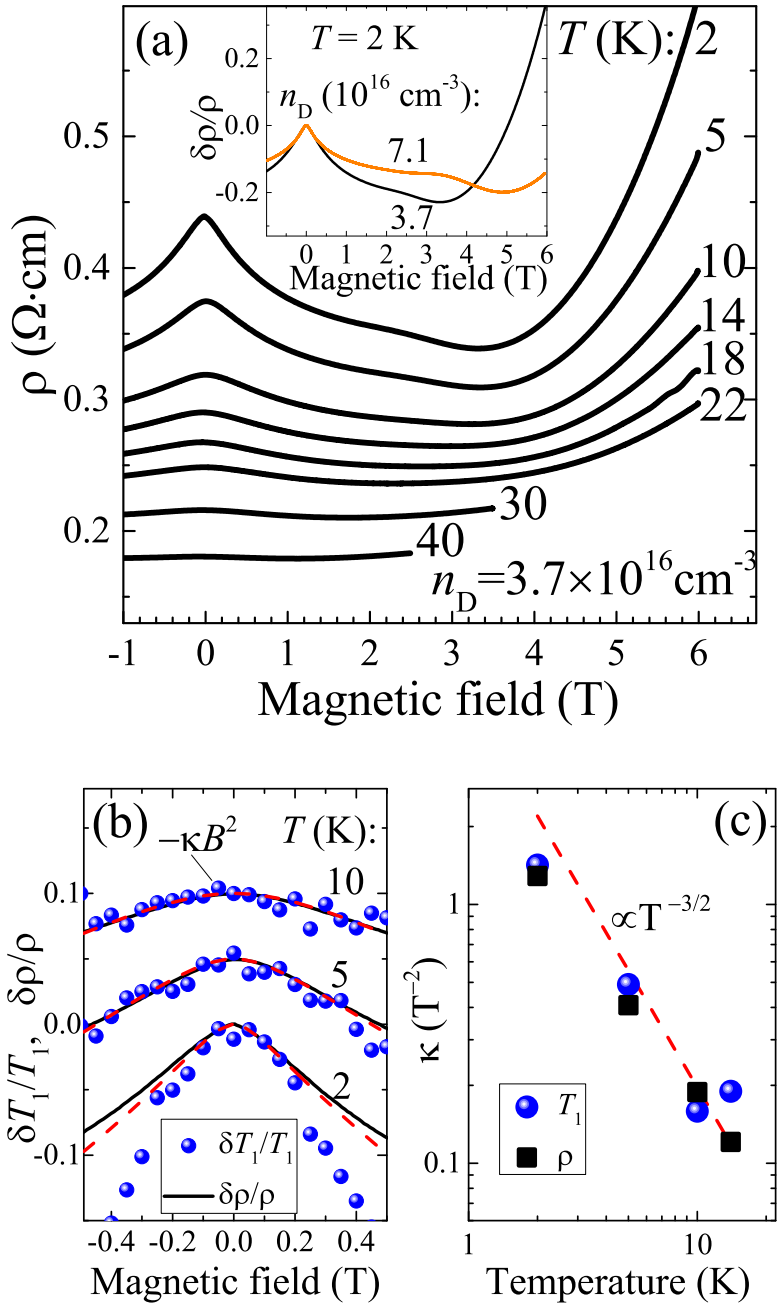


Рис. 2.11: (a) Зависимости удельного сопротивления от магнитного поля при различных температурах для образца n-GaAs с $n_{\mathrm{D}} = 3.7 \times 10^{16}$ см$^{-3}$. Во вставке показаны магнитополевые зависимости относительного изменения удельного сопротивления $\rho(B_{\mathrm{F}})/\rho(0) - 1$ для двух образцов n-GaAs с различными концентрациями доноров при $T = 2$ K. (b) Зависимости относительного изменения T_1 (шарики) и ρ (сплошные черные линии) от магнитного поля в области слабых полей при различных температурах. Кривые сдвинуты вертикально для наглядности. Пунктирные линии показывают аппроксимацию экспериментальных зависимостей уравнением (2.13). (c) Кривизна зависимостей $\delta T_1/T_1$ (шарики) и $\delta\rho/\rho$ (квадраты) от температуры. Пунктирная линия показывает зависимость $T^{-3/2}$ [A8].

Обычно слабая локализация проявляется при измерении сопротивления образца, которое классически дается выражением $\rho = m_{\rm e}/\tau_p n_{\rm e} e^2$, где $n_{\rm e}$ – концентрация электронов. Таким образом, удельное сопротивление ρ, как и время T_1, обратно пропорционально времени рассеяния электронов на примесях τ_p (см. формулы (2.11),(2.12), напомним, что $\tau_3 \sim \tau_p$), в котором и содержится информация о движении электрона, и, в частности, о слабой локализации.

Для того, чтобы независимо экспериментально подтвердить наличие слабой локализации и оценить величину эффекта в рассматриваемой системе, А. Ю. Кунцевичем были проведены измерения *магнетосопротивления* на тех же образцах. Измерения магнетосопротивления проводились с использованием стандартной 4х-контактной методики с синхронным усилителем. Ток измерения (100 мкА, 36 Гц) был достаточно мал и не приводил к перегреву образца при самой низкой температуре. Омические контакты (с почти независящим от T сопротивлением равным около 100 Ом) были получены отжигом капель индия поверх предварительно-процарапанной пластины (10 минут при температуре 400°C в вакууме). Измерения проводились в криостате PPMS-9 с использованием системы Cryogenics CFMS-16 при температурах (2-40 K) в магнитном поле (до 6 Тл). Направление магнитного поля, перпендикулярного поверхности образца, и направление тока менялось с последующей симметризацией данных для компенсации неизбежного рассогласования контактов.

Рисунок 2.11(а) показывает зависимость удельного сопротивления от магнитного поля. Из него видно отрицательное магнетосопротивление на начальном участке зависимости, которое, в соответствии с известными работами, возникает в результате подавления магнитным полем слабой локализации [168, 169, 170, 171, 172, 173, 174, 183]. В больших полях наблюдается положительное магнетосопротивление, предположительно за счет индуцированного полем сжатия волновых функций электронов на донорах, а также, возможно, за счет возникновения осцилляций Шубникова-де Гааза. Наблюдаемое поведение качественно аналогично таковому для $T_1(B_{\rm F})$ [Рис. 2.10] и, в частности, имеет такой же масштаб магнитного поля слабой локализации. Более того, отрицательное магнетосопротивление наблюдается в том же диапазоне температур, что и уменьшение T_1 с $B_{\rm F}$.

Следуя работам [184, 43, 44, 172, 173, 174], поправку к T_1 и ρ, вызванную слабой локализацией можно вычислить как

$$\frac{\delta T_1(B_{\rm F})}{T_1(0)} = \frac{\delta\rho(B_{\rm F})}{\rho(0)} = \frac{\delta\tau_p(B_{\rm F})}{\tau_p(0)} = -\frac{m_{\rm e}}{2\pi^2\hbar n_{\rm e}\tau_p(0)}\sqrt{\frac{|e|B_{\rm F}}{\hbar c}}F_3\left(\frac{B_\phi}{4B_{\rm F}}\right), \qquad (2.13)$$

где $B_\phi = \hbar c/(|e|l_\phi^2)$, $l_\phi = \sqrt{D\tau_\phi}$ — длина фазовой релаксации, τ_ϕ – время фазовой релаксации, связанное с процессами неупругого электрон-электронного или электрон-фононного

рассеяния. Также здесь рассматривается диффузионный режим, с $\tau_\phi \gg \tau_p, \tau_3$ и магнитной длиной $l_B = \sqrt{\hbar c/(|e|B_\mathrm{F})}$ намного превышающей длину свободного пробега, $l_B \gg v_\mathrm{F}\tau_p$. Кроме того, мы накладываем условие достаточно слабого спин-орбитального взаимодействия, $T_1(0) \gg \tau_\phi$, означающее сохранение спина электрона при прохождении замкнутых контуров, в которых происходит интерференция. Функция $F_3(x)$ определяется следующим выражением [172, 173, 174]:

$$F_3(x) = \sum_{n=0}^{\infty}\left[2(\sqrt{n+1+x}-\sqrt{n+x}) - \frac{1}{\sqrt{n+1/2+x}}\right].$$

Отметим, что для $x \ll 1$ $F_3(x) \approx 0.605$ и при $x \gg 1$ $F_3(x) \approx 1/(48x^{3/2})$.

Таким образом, согласно уравнению (2.13) относительное изменение T_1 и ρ, вызванное слабой локализации должно быть одинаковым. На Рис. 2.11(b) показаны относительные изменения с магнитным полем T_1 (сферы) и ρ (сплошные линии), $\delta T_1/T_1 \equiv T_1(B_\mathrm{F})/T_1(0) - 1$ и $\delta\rho/\rho \equiv \rho(B_\mathrm{F})/\rho(0) - 1$, соответственно. Уравнение (2.13), строго говоря, верно, если квантовые поправки малы, то есть для $\delta T_1/T_1, \delta\rho/\rho \ll 1$, что не выполняется в нашем образце с концентрацией электронов не сильно превышающей порог MIT. Тем не менее, измеренные магнитополевые зависимости $\delta T_1/T_1$ и $\delta\rho/\rho$ находятся в хорошем количественном согласии друг с другом в слабых магнитных полях.

Пунктирные линии на Рис. 2.11(b) показывают расчет согласно уравнению (2.13) с разумным набором параметров, а именно $\tau_p = 55$ фс не зависящим от температуры и $\tau_\phi = A/T$ [174, 185] с $A = 19$ пс·К. Обратная температурная зависимость времени фазовой релаксации наблюдалась для аналогичной системы GaAs [174] с $n_\mathrm{e} = 2.9\times10^{16}$ cm^{-3}, с близким значением $A \approx 12$ пс·К. Значение $\tau_p = 55$ фс хорошо согласуется со временем $\tau_3 = 40$ фс, полученным при рассмотрении классической релаксации Дьяконова-Переля и анализе $T_1(B_\mathrm{F})$ в больших полях.

В слабых полях $B_\mathrm{F} \ll B_\phi$ уравнение (2.13) приближенно можно записать как

$$\frac{\delta T_1(B_\mathrm{F})}{T_1(0)} = \frac{\delta\rho(B_\mathrm{F})}{\rho(0)} \approx -\kappa B_\mathrm{F}^2, \tag{2.14}$$

с префактором $\kappa = 0.048(e/m_\mathrm{e}c)^2\sqrt{\tau_p\tau_\phi^3}$. В исследованном интервале температур $\tau_p \sim \tau_3$ не зависит от температуры, как установлено выше исходя из независящего от T квадратичного возрастание T_1 с B_F в больших полях в соответствии с формулой (2.12). При этом $\tau_\phi = A/T$, где A — константа [174, 185]. Таким образом, $\kappa \propto T^{-3/2}$. Значения кривизны κ, извлеченные их зависимостей $T_1(B_\mathrm{F})$ и $\rho(B_\mathrm{F})$ в малых магнитных полях, показаны на 2.11(c). Они хорошо

согласуются друг с другом и следуют зависимости $T^{-3/2}$, как показано красной пунктирной линией.

Мы также исследовали зависимости T_1 и ρ от магнитного поля для образца с более высокой концентрацией доноров 7.1×10^{16} см$^{-3}$. Соответствующие результаты представлены на вставках к Рис. 2.10 и 2.11(а). Видно, что эффект слабой локализации уменьшается примерно в два раза при $n_{\mathrm{D}} = 7.1 \times 10^{16}$ см$^{-3}$ по сравнению с образцом с $n_{\mathrm{D}} = 3.7 \times 10^{16}$ см$^{-3}$, как и ожидалось из уравнения (2.13), которое содержит $n_{\mathrm{e}} \approx n_{\mathrm{D}}$ в знаменателе. Времена τ_3, τ_p и τ_ϕ оказались теми же для второго образца.

2.6 Заключение по данной главе

В данной главе мы рассмотрели поперечную и продольную спиновую динамику электронного ансамбля в n легированном GaAs в зависимости от магнитного поля, температуры и концентрации доноров. Для образца с концентрацией доноров ниже порога MIT обнаружено неожиданное увеличение времени спиновой дефазировки T_2^* при увеличении температуры, связанное с динамическим сужением распределения ларморовских частот вследствие обменного взаимодействия между электронными спинами. Обнаружено линейное возрастание времени продольной спиновой релаксации T_1 с магнитным полем. При этом увеличение температуры приводит к уменьшению T_1 в магнитном поле и выполаживанию зависимости $T_1(B_{\mathrm{F}})$, так, что выполняется соотношение $T_1(B)T_2^*(B) \approx \mathrm{const}$. Такая связь между временем дефазировки спинового ансамбля T_2^*, которое определяется неоднородным разбросом g факторов в системе и временем T_1, которое, обычно, определяется однородными факторами, может быть объяснена на основе представления о продольной спиновой релаксации, которая сопровождается спиновой диффузией, эффективность которой, в свою очередь, зависит от ширины распределения частот спиновой прецессии или δg. Увеличение концентрации доноров также приводит к сужению распределения g факторов, увеличению T_2^* и уменьшению T_1 в магнитном поле.

Вблизи или выше порога делокализации электронов, времена T_1 и T_2^* близки и не сильно зависят от магнитного поля. В этом режиме слабая локализация электронов, обычно проявляющаяся в транспортных экспериментах, существенно влияет на их спиновую динамику. Время продольной спиновой релаксации T_1, демонстрирует аномальное уменьшение с увеличением магнитного поля при низких температурах. Это связанно с тем, что при низких температурах в отсутствии магнитного слабая локализация приводит к увеличению времени T_1. Магнитное поле разрушает слабую локализацию, уменьшая, тем самым, T_1. Это пока-

зывает, что физика, изучаемая в транспортных экспериментах, которые охватывают всю совокупность физических явлений между электрическими контактами, может быть изучена локально в пределах лазерного пятна посредством исследования спиновой динамики электронов. Потенциал этого подхода будет использован и для исследования двумерных систем в следующей главе.

Итак, делокализация электронов ярко проявляется в спиновой динамике. В фазе изолятора, при низкой концентрации доноров и низкой температуре, электронная спиновая система характеризуется большим неоднородным разбросом частот ларморовской прецессии, большой разницей во временах продольной и поперечной релаксации спинового ансамбля, которые имеют сильную зависимость от магнитного поля. При увеличении концентрации доноров либо температуры, так, что электроны (скорее их спины) становятся подвижными, разброс частот ларморовской прецессии уменьшается, времена T_1 и T_2^* становятся близкими по значению и слабо зависящими от магнитного поля.

Глава 3

Спиновая динамика в низкоразмерных системах на основе GaAs: режим квантового эффекта Холла в квантовых ямах и синхронизация спиновых мод в квантовых точках

3.1 Введение

В предыдущих главах мы уже обсуждали, что электронная спиновая релаксация в полупроводниках без центра инверсии, таких как GaAs, при низких температурах обычно определяется эффективным магнитным полем, действующем на спин электрона [55, 153]. Для локализованных электронов основной вклад в релаксацию дает ядерное поле Оверхаузера, связанное со сверхтонким взаимодействием электронных и ядерных спинов [76, 61]. Для свободных же электронов спиновая релаксация определяется в основном спин-орбитальным полем Дрессельхаус или Рашбы, возникающим из-за движения электрона [176, 186, 187].

В предыдущей главе нами была рассмотрена спиновая релаксация в объемном n-GaAs. В настоящей главе мы рассмотрим особенности спиновой релаксации в системах пониженной размерности на основе GaAs.

Особый интерес представляет случай *квантовых ям* (КЯ) с высокоподвижным двумерным электронным газом (ДЭГ). Здесь электроны свободны, и в спиновой релаксации преобладает механизм Дьяконова-Переля. Отметим, что, в отличие от объемных систем,

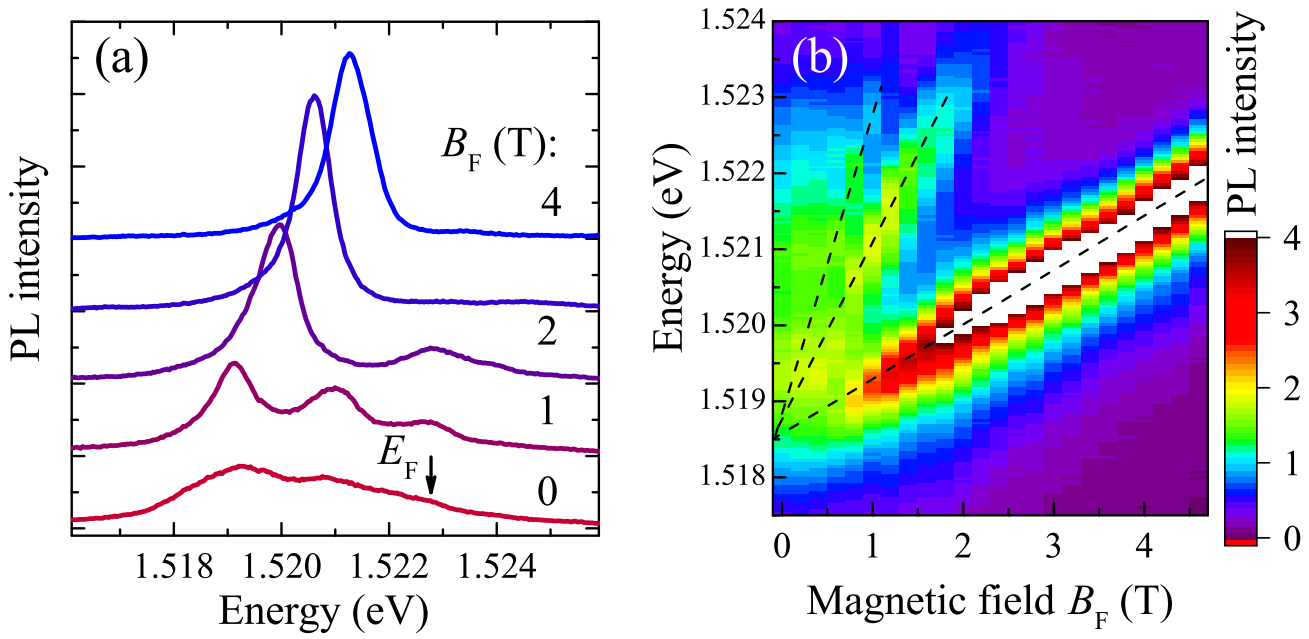


Рис. 3.1: (a) Спектры ФЛ при различных значениях магнитного поля, приложенного вдоль нормали к образцу с КЯ GaAs/AlGaAs. (b) Карта, показывающая цветом интенсивность ФЛ в зависимости от магнитного поля и энергии. (a),(b) Температура $T = 2$ К [A5].

в КЯ явления рассеяния электронов редки, поскольку доноры расположены в барьерных слоях, так что время спиновой релаксации относительно мало в магнитном поле поперечном относительно нормали к КЯ [30, 31]. При увеличении магнитного поля можно ожидать сильного проявления транспортных эффектов в спиновой релаксации, как мы видели в конце предыдущей главы. Наиболее известным явлением, связанным с движением электронов ДЭГ в магнитном поле, является квантовый эффект Холла (КЭХ) [189]. Он имеет место при низких температурах в сильных магнитных полях, приложенных вдоль нормали к образцу, когда расстояние между уровнями Ландау превышает тепловое уширение и неоднородность потенциала КЯ. Действительно, в работах [36, 37] и [38, 39, 40] наблюдалось резкое увеличение времени поперечной неоднородной дефазировки T_2^* для магнитных полей, соответствующих нечетным факторам заполнения $\nu = 2\pi\hbar n_e/eB_F$, где n_e — плотность электронов, B_F — магнитное поле вдоль нормали к образцу (в геометрии Фарадея), e — заряд электрона. Этот эффект был объяснен на основе представления о скирмионах [37] и формированием мод Голдстоуна [39, 40, 190]. Кроме того, при $\nu = 2$ было предсказано чрезвычайно большое время продольной спиновой релаксации T_1 [41], и этот факт был использован для создания и исследования циклотронных магнитоэкситонов [191, 192, 193].

В этой главе мы будем исследовать продольную и поперечную динамику спина в высокоподвижном ДЭГ в квантовой яме GaAs/AlGaAs, используя метод расширенной спектроскопии накачки–зондирования с измерением керровского вращения [A16], представленный в

главе 2. Мы покажем, что при увеличении магнитного поля вдоль нормали КЯ наблюдается увеличение времени продольной и поперечной спиновой релаксации спиновой релаксации со скоростью, обратно пропорциональной температуре. Однако при более высоких полях и низких температурах начинают проявляться осцилляции в T_1 и T_2^*, так что T_1 имеет максимумы при четных факторах заполнения, а T_2^* — при нечетных. Максимумы в T_1 при четных факторах заполнения связаны с уменьшением числа состояний в которые может происходить рассеяние при спиновой релаксации [A5].

В нульмерной системе – *квантовых точках* (КТ), где электроны локализованы за счет трехмерного удержания, спиновая релаксация электронов определяется ядерным окружением [21, 155, 188, A11, A10], тогда как релаксация за счет спин-орбитального взаимодействия здесь существенно подавлена. Отчасти, поэтому полупроводниковые КТ представляют собой удобную платформу для исследования спина электрона и управления им [5]. Одним из наиболее важных параметров, связанных с практическим применением спина в качестве квантового бита является время его когерентности T_2. Для ансамбля КТ измерение T_2 затруднено из-за неоднородностей и электронная спиновая прецессия неоднородного ансамбля КТ затухает за время $T_2^* \ll T_2$. Однако при определенных условиях неоднородности, приводящие к короткому T_2^* можно использовать для измерения реального времени спиновой когерентности T_2 и манипуляций спином. Это достигается при периодической оптической ориентации ансамбля КТ, которая приводит к синхронизации спиновых мод (ССМ). Данный эффект был обнаружен в работе [23] и исследуются уже больше 15 лет [210, 211, 212, 213, 214, 215, 216, 217]. Однако до недавнего времени спектр распределения частот спиновой прецессии в КТ после воздействия периодических лазерных импульсов не был экспериментально измерен. Это стало возможным после разработки расширенного метода накачки–зондирования [A16]. В данной главе будет рассказано об измерениях динамики синхронизированных спиновых мод после резкой остановки импульсов накачки в КТ на основе GaAs. Эта динамика характеризуется возрождениями и затуханиями спиновой прецессии. Причем период этих всплесков соответствует периоду следования лазерных импульсов. Эта динамика свободной спиновой эволюции позволяет получить частотный спектр спиновой прецессии ансамбля КТ. Мы исследуем динамику возникновения эффекта ССМ, а также влияние ядерной поляризации на частотный спектр спиновой прецессии [A11, A10].

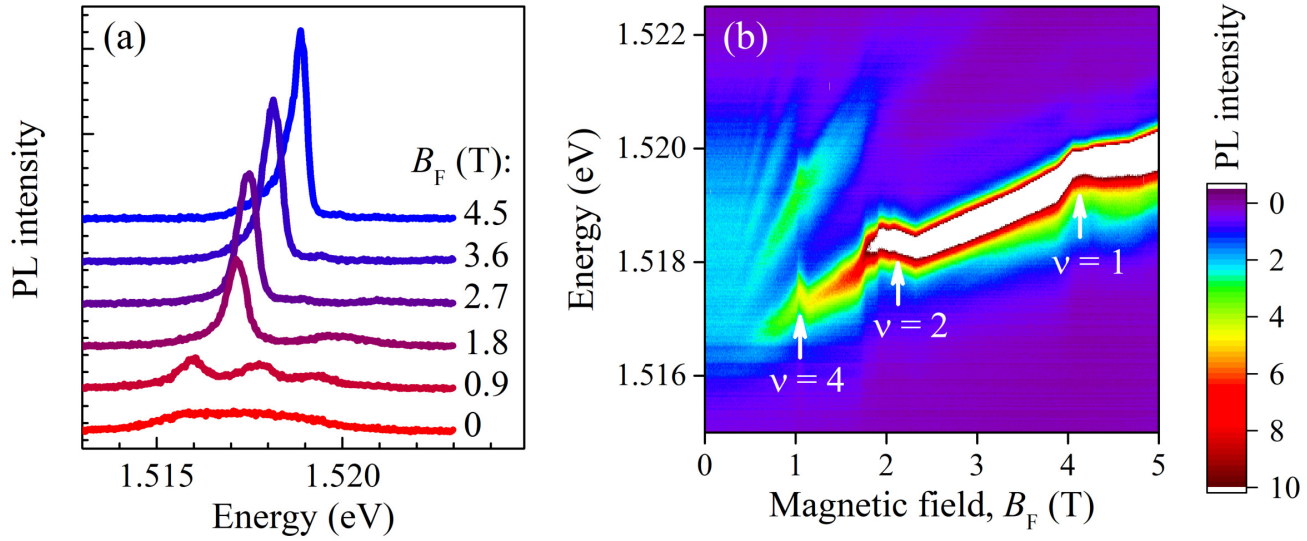


Рис. 3.2: Особенности при целых факторах заполнения в ФЛ. (a) Спектры ФЛ при различных значениях магнитного поля для образца (отличного от того, для которого представлены остальные результаты) с КЯ GaAs/AlGaAs, содержащей электроны с концентрацией $n_e = 0.9 \times 10^{11}$ см$^{-2}$. (b) Карта, показывающая цветом интенсивность ФЛ в зависимости от магнитного поля и энергии. (a),(b) Температура $T = 2$ К.

3.2 Спиновая динамика высокоподвижного электронного газа в квантовых ямах

Представленные здесь результаты получены на структуре с одиночной модуляционно-легированной КЯ GaAs, содержащей ДЭГ с концентрацией n_e около 1×10^{11} см$^{-2}$. Структура выращена на подложке (001)-GaAs, на которую сначала наносился буферный слой GaAs, далее сверхрешетка GaAs/$Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ со 100 периодами для релаксации деформации, затем квантовая яма GaAs шириной 25 нм, за которой следует толстый слой $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ с δ-легwированием Si и закрывающим слоем GaAs. Холловская подвижность ДЭГ в КЯ составляла $\mu_e > 2 \times 10^6$ см^2/Вс при $T = 2$ К.

Измерения проводились в криостате с расщепленным сверхпроводящим соленоидом. Спектры фотолюминесценции (ФЛ) образца для различных магнитных полей B_F, приложенных вдоль нормали к образцу (в геометрии Фарадея), показаны на Рис. 3.1(a). При $B_F = 0$ Т спектр ФЛ простирается от 1.5185 до 1.5225 эВ. Ширина спектра позволяет оценить энергию Ферми ДЭГ, $E_F \approx 4$ мэВ, что соответствует концентрации электронов $n_e = m_e E_F/\pi\hbar^2 \approx 1.1 \times 10^{11}$ см$^{-2}$, где $m_e = 0.067 m_0$ — эффективная масса электрона, m_0 — масса электрона в вакууме. С увеличением магнитного поля появляются отчетливые пики ФЛ, соответствующие дискретным уровням энергии, обусловленным квантованием Ландау

в двумерной системе. Из Рис. 3.1(b) видно, что энергетические положения пиков ФЛ линейно возрастают с полем, следуя зависимости $E_n = E_0 + \hbar\omega_c(n + 1/2)$, где $E_0 \approx 1.5185$ эВ соответствует энергетическому расстоянию между зоной проводимости и валентной зоной в КЯ, $\omega_c = eB/m_e$ – частота циклотронной прецессии. Эксперимент дает $\hbar\omega_c \approx 1.63$ мэВ/Тл, что хорошо согласуется с расчетной электронной циклотронной энергией 1.73 мэВ/Тл. Это согласие указывает на то, что свободные электроны рекомбинируют со связанными дырками. Интересно, что в работе [74] сообщалось, что при квазирезонансном возбуждении ДЭГ, электроны рекомбинируют с подвижными дырками, в результате чего расстояние между линиями ФЛ составляет 2.1 мэВ/Тл, что соответствует сумме электронных и дырочных циклотронных энергий. Интересно, что при увеличении разрешения по полю, в зависимости спектра ФЛ от магнитного поля появляются особенности, соответствующие целым факторам заполнения [194, 195]. Это демонстрируют данные на Рис. 3.2, полученные для схожего образца.

Для исследования спиновой динамики применялся расширенный метод накачка– зондирование [A16], описанный в главе 2. В данном случае регистрировалась керровская эллиптичность, возникающая после отражения от образца линейно-поляризованного луча зондирования. Керровская эллиптичность, как и керровское вращение, пропорциональна спиновой поляризации [102], но менее чувствительна к изменению энергии возбуждения. Для накачки и зондирования использовались импульсы с периодом повторения $80T_o = 1050$ нс, чтобы явно превысить характерное время затухания спиновой поляризации. Для измерения времени продольной спиновой релаксации T_1 магнитное поле B_F до 6 Т прикладывалось параллельно направлению распространения света, то есть параллельно нормали к образцу (геометрия Фарадея). В этих экспериментах энергия фотонов как накачки, так и зондирующего пучка составляла 1.523 эВ, что близко к энергии Ферми ДЭГ.

Динамика эллиптичности показана на Рис. 3.3(a) для различных значений магнитного поля B_F. Полная картина динамики эллиптичности в зависимости от магнитного поля показана цветной картой на Рис. 3.3(b). В течение первых ~ 5 ns (при $B_F \gtrsim 0.5$ Тл) динамика имеет признаки неэкспоненциальности и даже немонотонности. На более поздних временах затухание близко к экспоненциальному, что позволяет определить время продольной спиновой релаксации T_1. Зависимость T_1 от магнитного поля показана на Рис. 3.3(c) для трех различных температур и на Рис. 3.3(d) при $T = 2$ К в широком диапазоне магнитных полей. Из этих зависимостей можно сделать следующие выводы. (i) При малых полях $B_F \lesssim 0.3$ Тл время релаксации квадратично по B_F, $T_1 \propto B_F^2$. (ii) При более высоких полях $B_F \gtrsim 0.3$ Тл, T_1 возрастает почти линейно с ростом B_F. Скорость этого возрастания dT_1/dB_F примерно

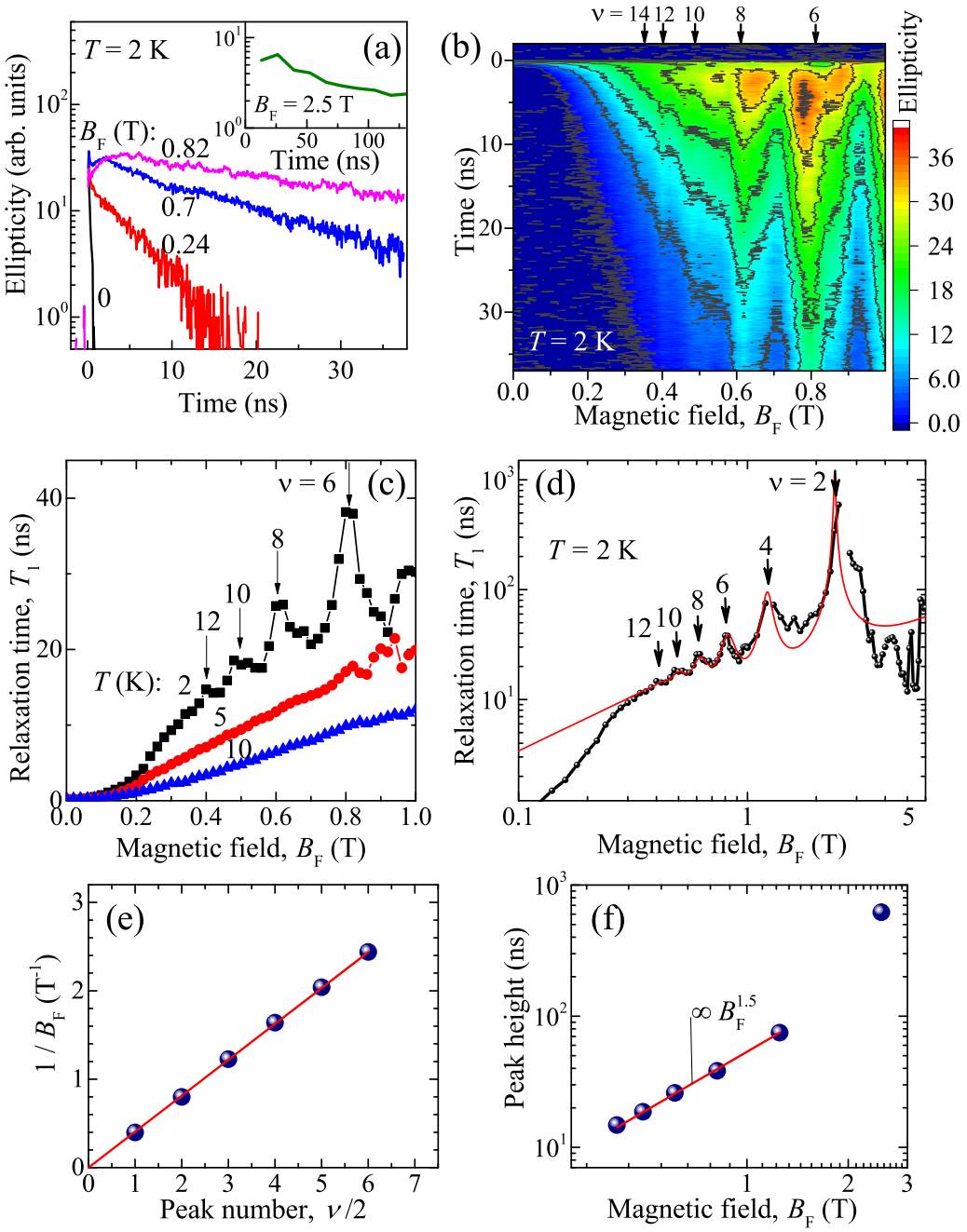


Рис. 3.3: Спиновая динамика ДЭГ в геометрии Фарадея [A5] в КЯ GaAs/AlGaAs. (a) Динамика керровской эллиптичности для различных значений магнитного поля, приложенного в геометрии Фарадея. На вставке показана долгоживущая динамика вблизи фактора заполнения $\nu = 2$. $T = 2$ K. (b) Двумерная карта, показывающая эллиптичность как функцию времени и магнитного поля. $T = 2$ K. (c) Зависимость времени продольной спиновой релаксации T_1 от магнитного поля при различных температурах. (d) Зависимость времени T_1 от магнитного поля при $T = 2$ K в широком диапазоне магнитных полей. Красная линия показывает теоретический расчет в соответствии с уравнением (3.5). (e) Зависимость обратного магнитного поля от номера пика (1 соответствуем самому высокополевому пику). (f) Зависимость значений времени T_1 в максимумах пиков от магнитного поля. Красная линия показывает степенную зависимость.

обратно пропорциональна температуре T. Таким образом, мы можем сделать вывод, что при $B_\mathrm{F} \gtrsim 0.3$ Тл $T_1 \propto B_\mathrm{F}/T$. (iii) При $B_\mathrm{F} \gtrsim 0.5$ Тл и при самой низкой $T = 2$ K, когда расстояние между уровнями Ландау превышает тепловую энергию $\hbar e B_\mathrm{F}/m_\mathrm{e} \gtrsim k_\mathrm{B}T$, появляются отчетливые пики на зависимости $T_1(B_\mathrm{F})$. Положения этих пиков соответствуют четным факторам заполнения ν, то есть когда $\nu/2$ уровней Ландау полностью заполнено электронами со спинами как параллельными, так и антипараллельными магнитному полю. Полностью заполненные уровни Ландау соответствуют отсутствию спиновых состояний свободных для рассеяния без значительного изменения энергии электрона, и, соответственно, замедлению спиновой релаксации. Около $\nu = 2$ ($B_\mathrm{F} \approx 2.5$ Тл) динамика эллиптичности является долгоживущей и неэкспоненциальной [вставка на Рис. 3.3(a)] с малой амплитудой, что затрудняет определение T_1. Очевидно, что пики становятся более выраженными при уменьшении ν. Зависимость обратного магнитного поля, при котором наблюдается пик $1/B_\mathrm{F}$ от номера пика $\nu/2$ представлена на Рис. 3.3(e). Эта зависимость является линейной, как и должно быть для факторов заполнения $\nu = 2\pi\hbar n_\mathrm{e}/eB_\mathrm{F}$. Из этой зависимости можно определить плотность электронов $n_\mathrm{e} = 1.2 \times 10^{11}$ см$^{-2}$, которая находится в согласии с оценками, приведенными выше. Также амплитуда пиков увеличивается сверхлинейно с B_F [Рис. 3.3(f)].

Теоретическое описание измеренной зависимости $T_1(B_\mathrm{F})$ было выполнено при ведущем участии Д. Н. Собьянина [A5]. Особенностью данной системы является большое время столкновения электрона с примесями (время релаксации импульса) τ_p. Его можно оценить из подвижности электронного газа как $\tau_p \sim m_\mathrm{e}\mu_\mathrm{e}/e \approx 80$ пс. Это время много больше периода циклотронной прецессии электрона, $\omega_\mathrm{c}\tau_p \gg 1$, где частота циклотронной прецессии $\omega_\mathrm{c} = eB/m_\mathrm{e}c = 0.5$ пс$^{-1}$ $B/1$ Тл. Здесь мы воспользуемся теорией Ивченко [175], и формулой (2.12) (левой ее частью), которая в предельном случае $\omega_\mathrm{c}\tau_p \gg 1$ с точностью до численного множителя 1.5 дает

$$T_1(B_\mathrm{F}) \sim T_1(0)(\omega_\mathrm{c}\tau_p)^2 \sim \tau_p \frac{\omega_\mathrm{c}^2}{\Omega_\mathrm{D}^2}, \tag{3.1}$$

где Ω_D – частота спиновой прецессии в поле Дрессельхаус. На Рис. 3.3(d) показана зависимость T_1 от B при $T = 2$ K в диапазоне магнитных полей до 6 Тл. При малых полях $T_1 \propto B^2$, что и стоит ожидать из уравнения (3.1) с независящим от магнитного поля временем τ_p. При увеличении поля выше ~ 0.3 мТ наблюдается линейная зависимость $T_1 \propto B$ что является неожиданным результатом.

Как мы уже видели ранее, спиновая релаксация сопровождается диффузией электронов. При столкновении, в среднем, электрон меняет свое положение на циклотронный радиус

$r_c = v_F/\omega_c$, где $v_F = \sqrt{2E_F/m_e}$ – скорость Ферми. Соответственно, коэффициент диффузии

$$D = \frac{r_c^2}{\tau_p}. \tag{3.2}$$

Сравнивая это выражение с выражением (3.1), мы приходим к

$$T_1 \sim \frac{l_s^2}{D}, \tag{3.3}$$

где $l_s = v_F/\Omega_D$ – длина диффузии, зависящая лишь от параметров образца.

В соответствии с представлением о связи T_1 с пространственной диффузией электронов, квадратичная зависимость $T_1(B_F)$ в слабом поле соответствует классической диффузии [196], тогда как поведение в сильном поле соответствует аномальной диффузии, которая наблюдалась ранее в других системах [197] и не имеет однозначного объяснения. Соответствующий коэффициент аномальной диффузии, называемой диффузией Бома, определяется выражением

$$D_B \sim \frac{k_B T}{eB}, \tag{3.4}$$

что соответствует экспериментальной зависимости $T_1 \propto B/T$ [Рис. 3.3(c)]. После подстановки уравнения (3.4) в уравнение (3.3) мы получаем время спиновой релаксации вида

$$T_1 \sim \tau_0 \frac{\hbar\omega_c}{k_B T} \frac{\rho_0}{\rho(v_F)}, \tag{3.5}$$

где эффективное время $\tau_0 \sim m_e l_s^2/\hbar \sim 1$ нс, как и длина спиновой диффузии, зависит только от характеристик образца. В уравнении (3.5) мы учли зависимость времени столкновения от плотности состояний $\rho(v_F)$ на уровне Ферми, $\tau_{col} = \tau_{col\,0}\rho_0/\rho(v_F)$, где $\tau_{col,0}$ и $\rho_0 = m_e/\pi\hbar^2$ – время столкновения и плотность состояний в малых магнитных полях [198]. Это соотношение отражает пропорциональность вероятности перехода плотности конечных состояний [199]. Для каждого отдельного уровня Ландау в $\rho(v)$ мы берем гауссову форму уширения со стандартным отклонением $\sigma = \sqrt{\sigma_0^2 + \sigma_{th}^2}$. Здесь $\sigma_0 \propto \sqrt{B}$ [200, 201], а $\sigma_{th} \sim k_B T$ учитывает конечную температуру.

На Рис. 3.3(d) показано сравнение теоретической зависимости (3.5) и экспериментальных результатов. Хорошее совпадение наблюдается в диапазоне магнитных полей $B > 0.3$ Т. В низких же магнитных полях имеет место квадратичное возрастание $T_1(B_F)$, соответствующая классической диффузии. Осциллирующая зависимость $T_1(B_F)$, где максимумы T_1 соответствуют четным ν, возникают из-за осциллирующей зависимости $\rho(v_F)$: при малых полях

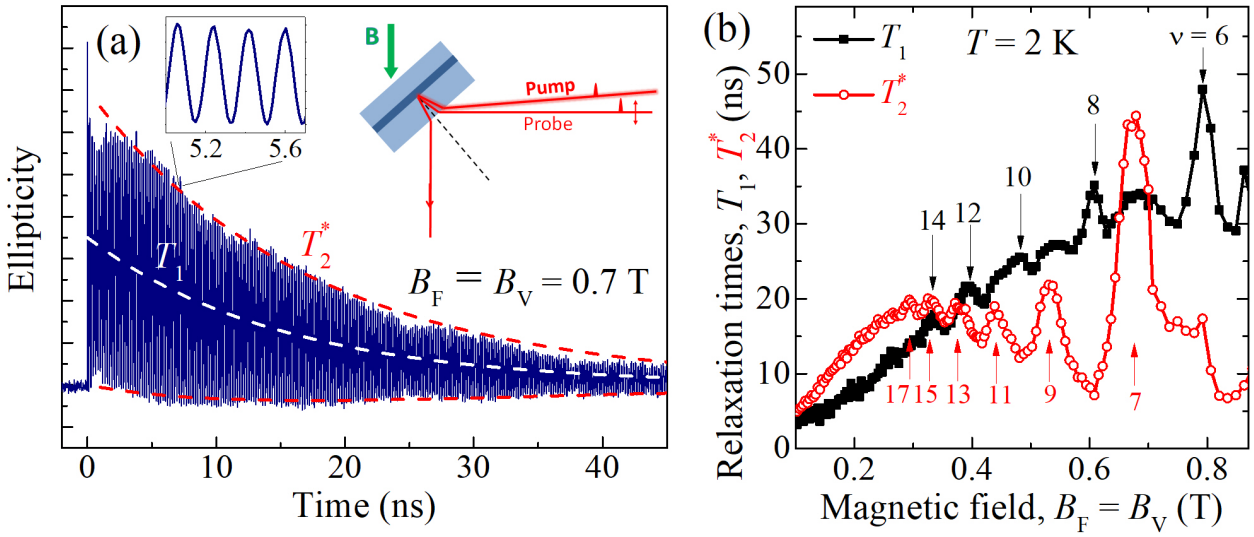


Рис. 3.4: Спиновая динамика для образца с КЯ GaAs/AlGaAs, нормаль которого повернута на угол 45° относительно направления магнитного поля [A5]. (a) Динамика керровской эллиптичности для значений продольной и поперечной компонент магнитного поля 0.7 Тл. Вставка показывает увеличенный участок динамики (слева) и геометрию эксперимента (справа). T = 5 K. (b) Зависимость времени продольной спиновой релаксации T_1 и времени поперечной спиновой дефазировки T_2^* от $B_F = B_V = B/\sqrt{2}$. $T = 2$ K.

плотность состояний снижается до постоянной ρ_0, а при больших полях, когда расстояние между соседними уровнями Ландау становится больше ширины отдельных уровней, возникают осцилляции. В этом смысле эффект аналогичен эффекту Шубникова-де-Гааза и квантовому эффекту Холла [202].

Затем мы переключаемся на геометрию эксперимента, в которой нормаль к образцу наклонена на $\sim 45°$ относительно магнитного поля и пучков накачки и зондирования [см. вставку на Рис. 3.4(a)]. Это позволяет наблюдать как монотонное затухание компоненты спина вдоль поля, так и прецессию компоненты перпендикулярной полю. Что самое главное, ненулевая компонента магнитного поля вдоль нормали к образцу приводит к квантованию Ландау, позволяя измерять спиновую динамику в режиме КЭХ. Падающие лучи преломляются на поверхности образца и падают на КЯ под углом $\sim 12°$ относительно нормали к образцу. Таким образом, импульс накачки создает спиновую поляризацию с близкими по величине компонентами вдоль и поперек магнитного поля, $S_\parallel \approx S_\perp$. В то время как $S_\parallel$ монотонно затухает со временем T_1, $S_\perp$ прецессирует относительно магнитного поля и затухает со временем T_2^*. Таким образом, проекция спина на нормаль к образцу, которая в конечном итоге детектируется зондирующим лучом, равна [A15]:

$$S(t) = \frac{S_\parallel}{\sqrt{2}} \exp\left(-\frac{t}{T_1}\right) + \frac{S_\perp}{\sqrt{2}} \exp\left(-\frac{t}{T_2^*}\right) \cos(\omega_L t), \tag{3.6}$$

где $\omega_{\mathrm{L}} = |g|\mu_{\mathrm{B}}B/\hbar$ — ларморовская частота. Таким образом, в этом эксперименте можно определить как T_1, так и T_2^*.

Измеренная динамика эллиптичности показана на Рис. 3.4(a). Согласно уравнению (3.6) затухание амплитуды прецессии дает время T_2^*, а затухание непрецессирующей компоненты дает T_1. Из подгонки уравнения (3.6) к экспериментальным данным мы также находим $|g| = 0.40$, тогда как знак g фактора, по-видимому, отрицательный в соответствии с ожиданиями из формулы Рот, определяющей соотношение между g фактором и энергией оптического перехода [2, 203]. Так что $g = -0.40$. На Рис. 3.4(b) показана зависимость T_1 и T_2^* от фарадеевской компоненты магнитного поля B_{F}, равной компоненте Фогта вдоль поверхности образца $B_{\mathrm{V}} = B_{\mathrm{F}} = B/\sqrt{2}$. Зависимость T_1 от магнитного поля ожидаемо похожа на зависимость в чистой геометрии Фарадея (Рис. 3.3) с острыми пиками при четных ν. Время поперечной спиновой релаксации T_2^* монотонно возрастает с $B_{\mathrm{F}} = B_{\mathrm{V}}$ при $B_{\mathrm{F}} \lesssim 0.3$ T. Интересно, что в этом диапазоне магнитных полей выполняется предельное соотношение $T_2^* \approx 2T_1$, так что поперечная спиновая релаксация ограничивается продольной спиновой релаксацией. При более высоких магнитных полях на зависимости $T_2^*(B_{\mathrm{F}})$ появляются отчетливые пики на позициях, соответствующих четным факторам заполнения, что согласуется с работами [36, 37, 38, 39, 40] .

3.3 Спиновая динамика электронов и дырок в квантовых точках на основе GaAs

Прецессия спинового ансамбля в КТ в поперечном магнитном поле, приложенном в геометрии Фогта, обычно характеризуется коротким временем $T_2^* \sim 1$ ns. Это связано с большим разбросом электронных g-факторов и эффективных магнитных полей ядерных спинов по КТ в ансамбле, который приводит к быстрой расфазировке спиновой поляризации [204, 205, 23]. Это можно наблюдать на Рис. 3.5 для КТ $\mathrm{InAs/In_{0.53}Al_{0.24}Ga_{0.23}As}$, излучающих в районе 1.6 мкм. Динамика фарадеевской эллиптичности зондирующего импульса после прихода импульса накачки, отражающая спиновую динамику, демонстрирует осцилляции, которые кажутся нерегулярными. Однако, как видно из преобразования Фурье данной динамики [вставка на Рис. 3.5(a)], это связано с наличием двух осциллирующих компонент с различными g факторами, соответствующих электронам и дыркам [A17, A15, A14]. Соответствующие g факторы можно определить из зависимостей частот прецессии от магнитного поля [Рис. 3.5(b)]. Но что более интересно, зависимости обратного времени затухания пре-

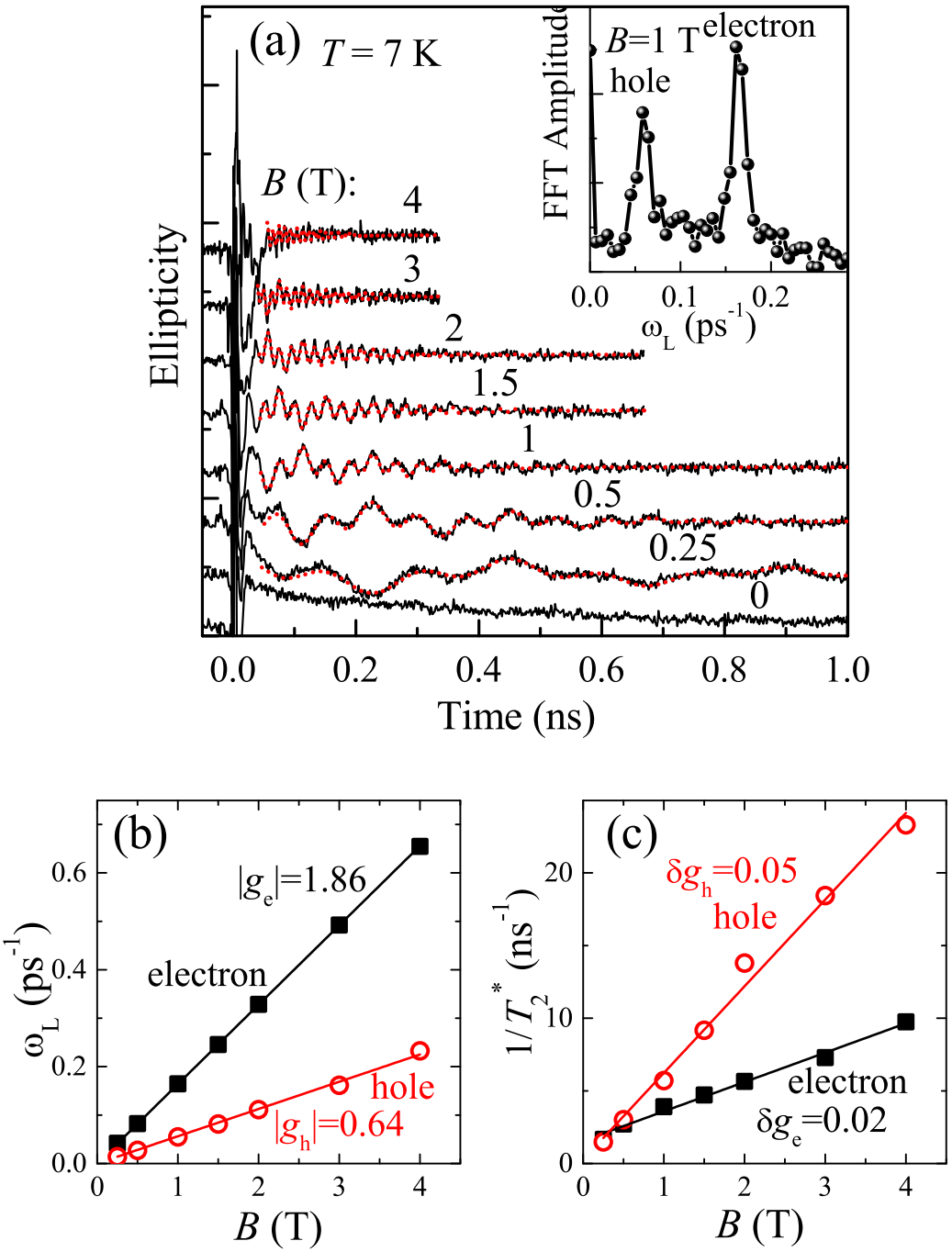


Рис. 3.5: (a) Спиновая динамика при различных магнитных полях, приложенных в геометрии Фогта, для КТ $InAs/In_{0.53}Al_{0.24}Ga_{0.23}As$ излучающих в районе 1.6 мкм. Красные пунктирные линии показывают аппроксимацию экспериментальных данных суммой двух затухающих синусоид. Кривые сдвинуты по вертикали для наглядности. На вставке показан спектр Фурье спиновой динамики $B = 1$ Тл. (b) Зависимости частоты спиновой прецессии от магнитного поля для электронов (полные квадраты) и дырок (открытые кружки). (c) Зависимости скорости затухания спиновой прецессии от магнитного поля для электронов (полные квадраты) и дырок (открытые кружки). (a)-(c) $T = 7$ К [A17].

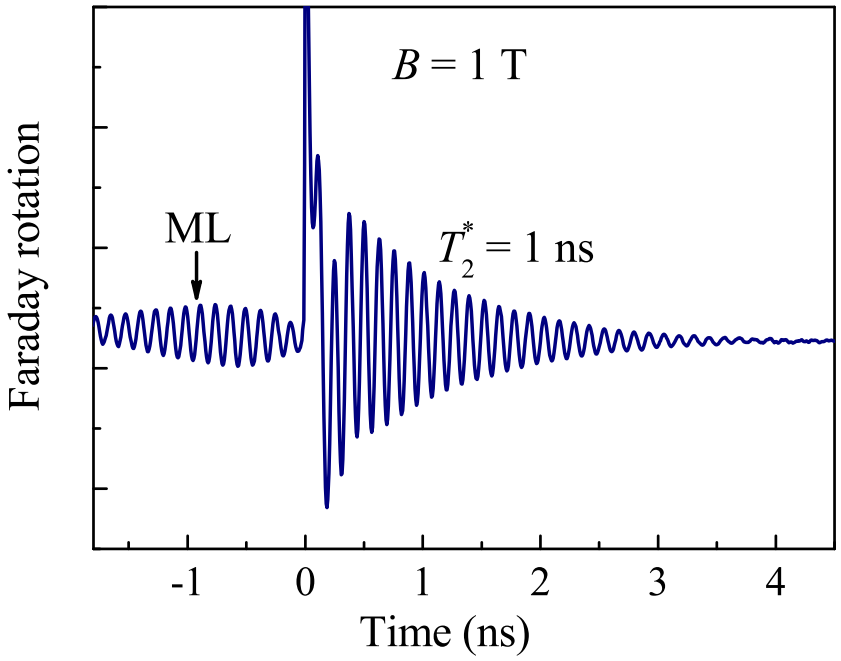


Рис. 3.6: Спиновая динамика для образца с КТ (In,Ga)As/GaAs в поле $B = 1$ Тл, приложенном в геометрии Фогта. $T = 6$ К. Сигнал на отрицательных временных задержках связан с эффектом синхронизации спиновых мод [23].

цессии от магнитного поля [Рис. 3.5(c)] близки к линейным в соответствии с формулой (1.5). Это означает, что уже в магнитном поле ~ 1 Тл время затухания спиновой прецессии T_2^* определяется разбросом g факторов и много меньше времени спиновой когерентности T_2, которое может находиться в микросекундном масштабе при температуре жидкого гелия [23, 206, 207, 111, 208, 113, 209].

Однако в некоторых системах с КТ наблюдается более сложная спиновая динамика, влияние на которую оказывает не только разброс частот ларморовской прецессии, но и реальное время спиновой когерентности T_2. Обратимся к Рис. 3.6, где показана спиновая динамика однократно заряженных (In,Ga)As/GaAs КТ. При положительных временных задержках мы наблюдаем электронную спиновую прецессию с $g = -0.56$ [знак определен в соответствии с формулой Рот (2.2)] и ожидаемо коротким временем затухания $T_2^* = 1$ нс. Однако при $t < 0$, то есть до прихода импульса накачки, мы неожиданно наблюдаем возрождение спиновой динамики. Очевидно, что эта спиновая поляризация происходит от предыдущих лазерных импульсов. Данный эффект был обнаружен в работе [23]. Он связан с тем, что накачка периодическими лазерными импульсами приводит к селективной ориентации спинов КТ с частотой ларморовской прецессии спинов, кратной частоте повторения импульсов накачки

$$f_{\mathrm{L}} = \frac{g\mu_{\mathrm{B}}B}{2\pi\hbar} = mf_{\mathrm{o}}, \tag{3.7}$$

где m-целое число. То есть происходит синхронизация спиновых мод (ССМ). Кроме того, дальнейшие исследования показали, что периодическая накачка приводит к поляризации ядерных спинов, подстраивая частоты большинства КТ под условие ССМ за счет сверхтонкого взаимодействия [155, 153]. Это явление называется ядерной фокусировкой частоты [210, 211, 212, 213, 214, 215, 216, 217, A11]. Далее будут представлены измерения свободной прецессии спинового ансамбля КТ после его периодического лазерного возбуждения, которые оказались возможными благодаря расширенному методу накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения [A16]. Эта динамика позволила впервые получить частотный спектр электронной спиновой прецессии ансамбля КТ.

Исследования ССМ проводились в образце, состоящем из 20 слоев КТ (In,Ga)As/GaAs, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке GaAs с ориентацией (001). Самоорганизация по схеме Странски-Крастанова приводит к формированию КТ, состоящих в среднем из 10^5 атомов. Для гомогенизации размера точек после роста образец был подвергнут термическому отжигу при температуре 880°C. Плотность КТ в каждом слое составляет 10^{10} см$^{-2}$. Образец δ-легирован кремнием на 16 нм ниже каждого слоя КТ с плотностью доноров, близкой к плотности КТ, что формирует ансамбль однократно заряженных КТ. Спектр ФЛ данных КТ характеризуется полосой шириной 30 мэВ с центральной энергией 1.38 [A10]. Образец помещался в криостат, магнитное поле до 8 Тл прикладывалось в геометрии Фогта перпендикулярно вектору распространения света и оси роста образца.

Для измерения динамики свободной спиновой прецессии электронов в КТ использовался расширенный метод накачки–зондирования, описанный в главе 2. Здесь помимо возможности измерять длительную спиновую динамику, мы использовали еще одно преимущество данного метода: возможность управлять протоколом импульсов накачки. В описанных здесь экспериментах мы использовали цуги, состоящие из N импульсов накачки, следующие с периодом повторения 1.6 μs. Расстояние между импульсами в рамках одного цуга составляло $T_\mathrm{o} = 13.1$ нс. При этом зондирующие импульсы, следующие синхронно с цугами с периодом повторения 1.6 μs, позволяли сканировать спиновую динамику как в рамках действия цуга, так и после него [Рис. 3.7(a)]. Таким образом, к ансамблю КТ прикладывалось N импульсов, ориентирующих спин и создающих эффекты ССМ и ядерной фокусировки, а затем измерялась свободная спиновая прецессия.

Результаты таких измерений после $N = 8$ импульсов накачки в магнитном поле $B = 2$ Тл представлены на Рис. 3.7(b). Момент времени $t = 0$ соответствует моменту прихода последнего лазерного импульса в цуге. Сигнал затухает в течение первой наносекунды из-за неоднородной дефазировки с $T_2^* \approx 0.5$ нс. Однако через $T_\mathrm{o} = 13.1$ сигнал возрождается

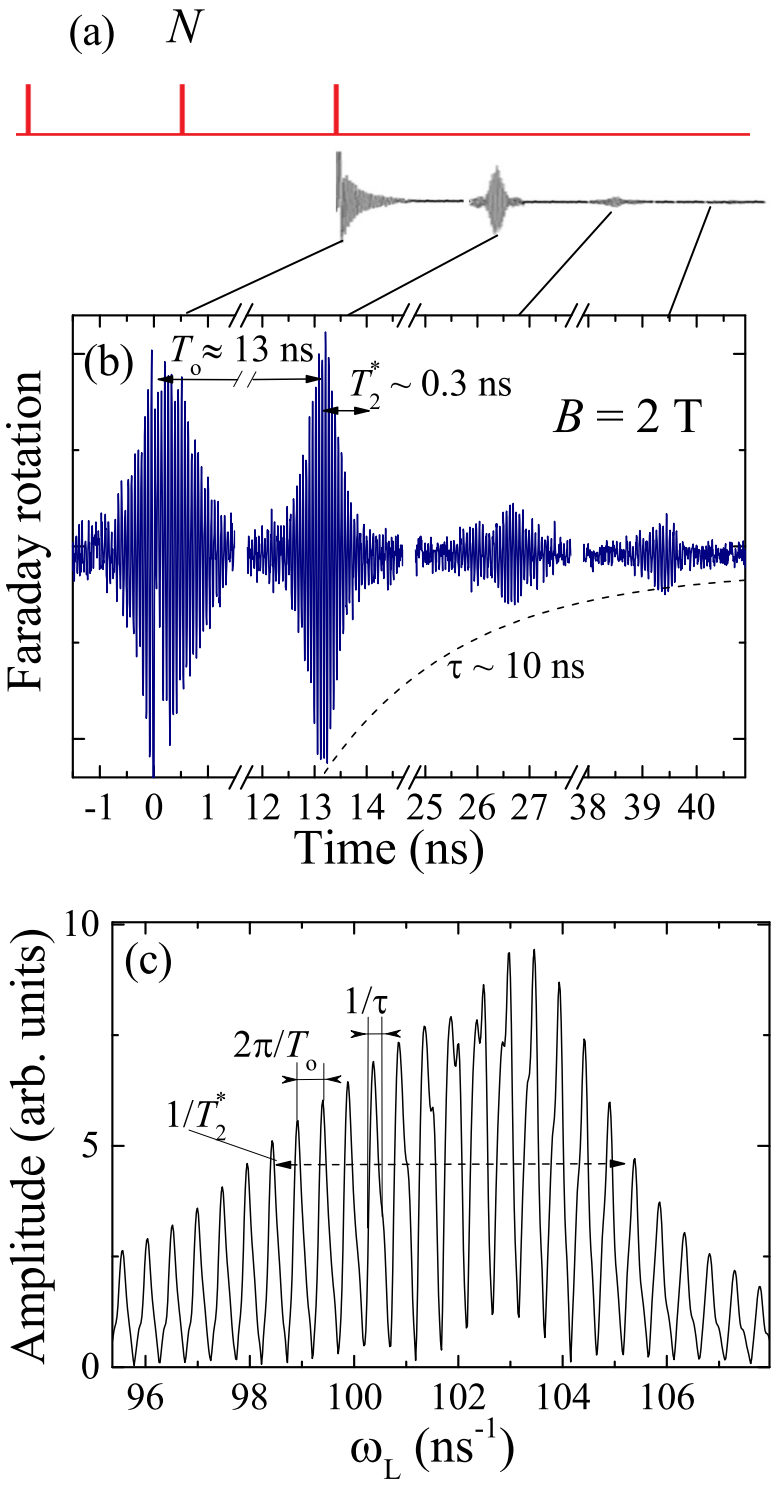


Рис. 3.7: (a) Последовательность из N лазерных импульсов, которая прерывается и далее происходят периодические затухания и возрождения спиновой прецессии для ансамбля однократно заряженных (In,Ga)As/GaAs КТ. (b) Спиновая динамика после 8 лазерных импульсов. Момент времени $t = 0$ соответствует приходу последнего лазерного импульса. (c) Спектр свободной спиновой прецессии, полученный как преобразование Фурье спиновой прецессии после прихода последнего импульса. Полная ширина спектра определяется временем неоднородной спиновой дефазировки T_2^*, расстояние между модами – периодом следования импульсов T_o, а ширина мод – временем затухания цугов спиновой прецессии. (b)-(c) $B = 2$ Тл, $T = 6$ К [A10].

снова и опять затухает. Такие же возрождения следуют и в дальнейшем в районе моментов времени $2T_o$, $3T_o$ и т.д., однако амплитуда этих всплесков резко затухает со временем. Таким образом, измеренная динамика фарадеевского вращения при $t > 0$ дает свободную эволюцию средней поляризации электронного спина в ансамбле. Преобразование Фурье этой динамики дает спектр прецессии спинов в ансамбле КТ, который представлен на Рис. 3.7(c). Спектр имеет общую ширину на половине высоты порядка 10 нс$^{-1}$, определяемую временем неоднородной дефазировки T_2^*. Он состоит из хорошо выраженных мод с междумодовым расстоянием $2\pi/T_o$, соответствующим периоду всплесков сигнала. Ширина и форма мод отражают характер затухания всплесков.

В частотный спектр спиновой прецессии [Рис. 3.7(c)] вносят вклад как распределение g-фактора, которое является внутренним свойством ансамбля КТ, так и условия его возбуждения. В частности, энергия возбуждающего лазера определяет средний g-фактор КТ, приобретающих спиновую поляризацию [218, A15]. Периодичность лазерного возбуждения предполагает эффективную поляризацию КТ с частотами электронных спинов, удовлетворяющими соотношению (3.7), что и составляет суть эффекта ССМ [23]. Однако даже для КТ с g-факторами, не удовлетворяющими уравнению (3.7), ядерное магнитное поле B_N дает вклад в общее магнитное поле и подстраивает ларморовскую частоту таким образом, чтобы удовлетворять соотношению (3.7). Это и есть эффект ядерной фокусировки частоты, усиливающий ССМ [155].

В дальнейшем мы выделим вклад ядерной фокусировки в ССМ с помощью деполяризации спинов ядер радиочастотным электромагнитным полем. Для манипулирования ядерным спином к образцу прикладывалась небольшая катушка с внутренним диаметром около 1 мм. Напряжение на катушку подавалось с помощью функционального генератора и 10 дБ усилителя. Напряжение на катушку подавалось в широком частотном диапазоне, перекрывающем ядерные магнитные резонансы для изотопов Ga, In, As, дающих основной вклад в сверхтонкое взаимодействие с электронным спином в данных КТ.

На Рис. 3.8(a) показано влияние РЧ поля на электронную спиновую прецессию при непрерывном периодическом возбуждении образца лазерными импульсами. Сигнал при $t > 0$ слабо подвержен влиянию РЧ поля. Однако сигнал при $t < 0$, связанный с ССМ существенно меняется при приложении уже небольшого РЧ поля. Меняется амплитуда сигнала, затем в динамике появляется минимум и меняется фаза сигнала при $t < -0.25$ нс. При дальнейшем увеличении амплитуды РЧ поля изменения сигнала прекращаются – он выходит на насыщение. Мы предполагаем, что в этом режиме ядерное поле, созданное за счет оптической ориентации электронных спинов, подавлено и эффект ядерной фокусировки частоты

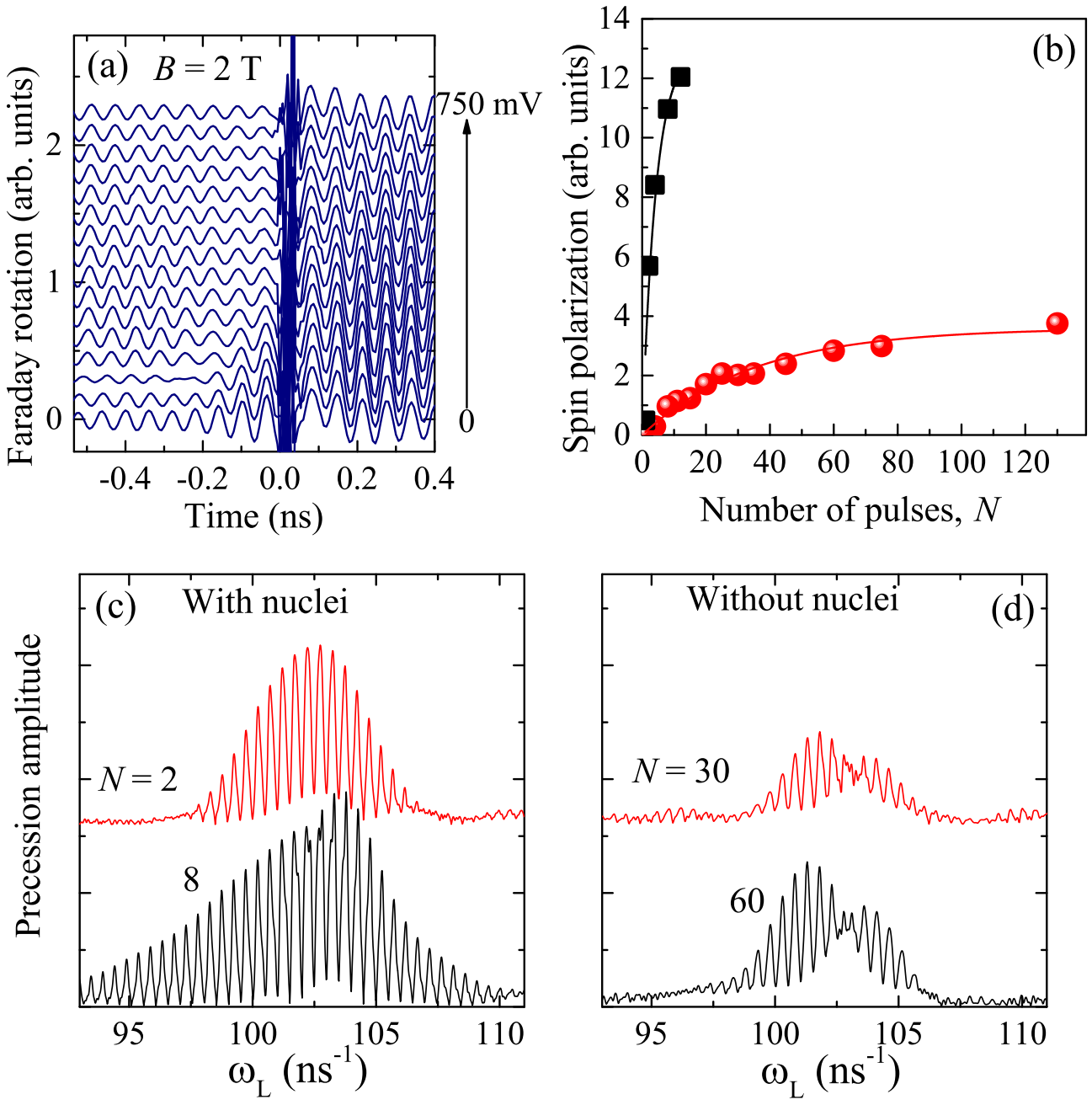


Рис. 3.8: (a) Влияние широкополосного РЧ поля, деполяризующего ядерные спины, на спиновую динамику в (In,Ga)As/GaAs КТ. (b) Зависимость амплитуды первого всплеска спиновой поляризации от количества предшествующих импульсов без РЧ поля (черные квадраты) и с РЧ полем (красные шарики). (c),(d) Спектры свободной спиновой прецессии после различного числа лазерных импульсов без (c) и с (d) РЧ полем. (a)-(d) $B = 2$ Тл, $T = 6$ К [A10].

отсутствует.

Для начала изучим динамику формирования ССМ с и без ядерной фокусировки. Для этого мы будем измерять максимальную амплитуду первого всплеска спиновой прецессии после окончания последовательности импульсов накачки. Эта амплитуда измеряется в зависимости от числа предшествующих импульсов [Рис. 3.8(b)]. Без РЧ поля, то есть с ядерной фокусировкой, для возникновения ССМ достаточно всего нескольких лазерных импульсов [черные квадраты на Рис. 3.8(b)]. Зависимость описывается экспоненциальным выходом на насыщение $1 - \exp(-N/N_{\text{rise}})$ с $N_{\text{rise}} \approx 4$. При выключении ядерной фокусировки РЧ полем для создания ССМ требуется гораздо больше импульсов [красные шарики на Рис. 3.8(b)], $N_{\text{rise}} \approx 35$, и максимальная амплитуда первого всплеска в 3 раза меньше, чем при наличии ядерной фокусировки. Таким образом, ядерная фокусировка существенно ускоряет процесс синхронизации спиновых мод. Характерное число импульсов накачки, необходимое для возникновения ССМ без ядерной фокусировки дает нижнюю оценку времени спиновой когерентности $T_2 > N_{\text{rise}} T_{\text{o}} \approx 0.5$ мкс.

Интересно также сравнить спектры свободной спиновой прецессии с и без ядерной фокусировки, показанные на Рис. 3.8(c) и 3.8(d), соответственно. Спектры при наличии ядерной фокусировки характеризуются большой глубиной модуляции. При этом ССМ формируется уже для двух импульсов накачки, тогда как увеличение числа лазерных импульсов приводит к появлению новых мод в спектре, а амплитуда спектра практически не меняется. При подавлении ядерной фокусировки [Рис. 3.8(d)] спектры прецессии характеризуются меньшей глубиной модуляции. При увеличении числа предшествующих импульсов N ширина спектра меняется слабо, но увеличивается его амплитуда.

Отметим, что характер свободной спиновой прецессии существенно зависит от магнитного поля. Это демонстрирует Рис. 3.9(a). При $B = 2$ Тл амплитуда каждого последующего всплеска меньше предыдущего, тогда как при $B = 4$ Тл второй всплеск интенсивнее первого, а интенсивность третьего снова падает. Такое поведение динамики при $B = 4$ Тл соответствует появлению промежуточных мод в спектре свободной прецессии [Рис. 3.9(a)], соответствующих условию $f_{\text{L}} = (n + 1/2) f_{\text{o}}$, между основными модами. Появление промежуточных мод при увеличении магнитного поля было впервые предсказано теоретически и обнаружено экспериментально в работе [A11]. Этот эффект объясняется различиями в механизме ядерной фокусировки для положительно и отрицательно отстроенных от резонанса КТ [A10, 45].

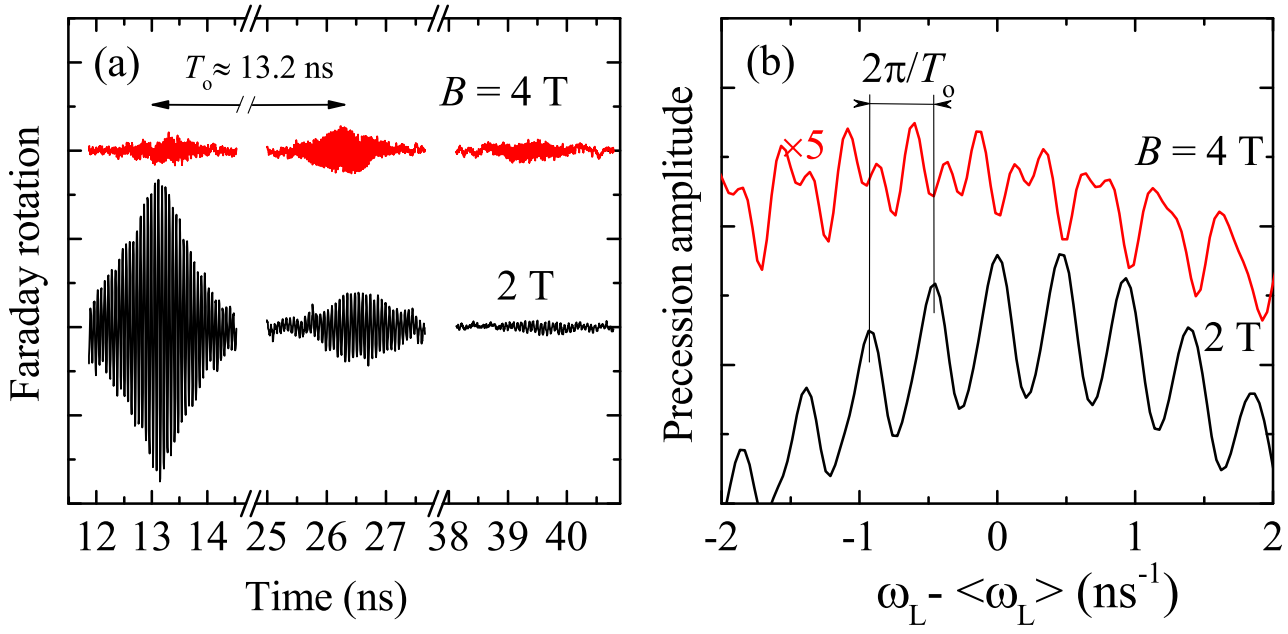


Рис. 3.9: (a) Спиновая динамика после 8 лазерных импульсов при двух различных магнитных полях в (In,Ga)As/GaAs КТ. Момент времени $t = 0$ соответствует приходу последнего лазерного импульса. (b) Спектр свободной спиновой прецессии для различных магнитных полей. (a),(b) $T = 6$ K [A11].

3.4 Заключение по данной главе

В этой главе мы исследовали продольную и поперечную динамику спина в высокоподвижном ДЭГ в КЯ GaAs/AlGaAs при низких температурах в сильных магнитных полях используя расширенный метод накачки–зондирования с измерением керровской эллиптичности. Магнитное поле, приложенное вдоль нормали к образцу, резко подавляет как продольную, так и поперечную спиновую релаксацию. В малых магнитных полях время продольной спиновой релаксации квадратично возрастает с полем, что предсказывает классическая теория. Затем зависимость времени T_1 от магнитного поля становится линейной с наклоном, обратно пропорциональным температуре. Это поведение является аномальным и не имеет хорошего объяснения. В диапазоне небольших полей в этой системе также достигается соотношение $T_2^* = 2T_1$. При более высоких полях, когда расстояние между уровнями Ландау превышает их уширение, в зависимости времен спиновой релаксации от магнитного поля появляются пики так, что T_1 и T_2^* имеют максимумы при четных и нечетных факторах заполнения, соответственно. Пики в зависимости T_1 от магнитного поля связаны с минимумами плотности состояний на уровне Ферми и соответствуют переходу при высоких полях и низких температурах в режим квантового эффекта Холла.

Также в данной главе были представлены исследования спиновой динамики в нульмер-

ных системах – КТ. В частности, описаны новые достижения в исследовании эффекта синхронизации спиновых мод. Впервые были получены спектры прецессии электронного спинового ансамбля в КТ, накачиваемых цугами лазерных импульсов; именно спектр спиновой прецессии является отправной точкой при изучении эффекта ССМ. Получение данных спектров оказалось возможным благодаря применению расширенного метода накачки–зондирования, позволившему измерить долгоживущую спиновую динамику и контролировать протокол импульсов накачки. Оказалось, что, действительно, спектр имеет модовую структуру, определяемую периодичностью накачки. При этом ширина каждой моды оказалась намного больше, чем $1/T_2$ ($T_2 \sim 1$ мкс [23]), чего не ожидалось в рамках многих теорий ССМ. Также мы смогли выделить вклад поляризации ядерных спинов в динамику электронных спинов и в эффект ССМ, прикладывая радиочастотное поле, деполяризующее ядерную спиновую систему. Мы показали, что наличие ядерной фокусировки делает электронные спиновые моды значительно более выраженными и индуцирует дополнительные моды в антирезонансах ларморовской частоты и частоты повторения лазерных импульсов. Было обнаружено, что при наличии ядерной фокусировки увеличение числа импульсов в цуге накачки приводит к резкому насыщению центральных мод и быстрому уширению спектра спиновой прецессии, то есть поле Оверхаузера выталкивает спины электронов в боковые моды, которые не накачиваются напрямую. При отсутствии ядерной фокусировки, увеличение числа импульсов накачки приводит к медленному росту амплитуды мод спиновой прецессии, давая нижнюю оценку в 0.5 мкс на время спиновой когерентности T_2.

Глава 4

Когерентная радиооптическая спектроскопия спиновой динамики

4.1 Введение

Когда магнитное поле приложено к ансамблю электронных спинов, они совершают прецессию Лармора с частотой заданной магнитным полем. Если к системе дополнительно приложить слабое радиочастотное (РЧ) или микроволновое магнитное поле (далее просто РЧ поле), осциллирующее с частотой близкой к ларморовской, возникает электронный парамагнитный резонанс (ЭПР). Открытие ЭПР Е. К. Завойским [47, 48] привело к появлению целого направления диагностики спиновых свойств с использованием РЧ поля, в том числе с временным разрешением [49, 219, 220]. Альтернативными, а иногда и комплементарными, методами спиновой физики являются оптические методы, основанные на явлении оптической ориентации [55]. Как уже было показано в предыдущих главах одним из наиболее прямых и универсальных является метод накачки–зондирования с детектированием фарадеевского или керровского вращения, дающий прямой доступ к динамике спинового ансамбля [97].

РЧ методы управления спиновыми состояниями и оптическое детектирование спиновой поляризации можно комбинировать. Такая комбинация называется оптически-детектируемым магнитным резонансом (ОДМР), при этом чаще всего измеряется влияние резонансного РЧ поля на циркулярную поляризацию фотолюминесценции (ФЛ). Это позволяет радикально повысить чувствительность ЭПР спектроскопии и делает возможным измерение отдельных объектов (КТ, ионов, центров окраски и т.д.) [7]. ОДМР может измеряться, в том числе, и с временным разрешением с использованием детектирования ФЛ [51, 221, 7] и рамановского гетеродинного детектирования [222, 223]. В первом случае измерение когерентной спиновой

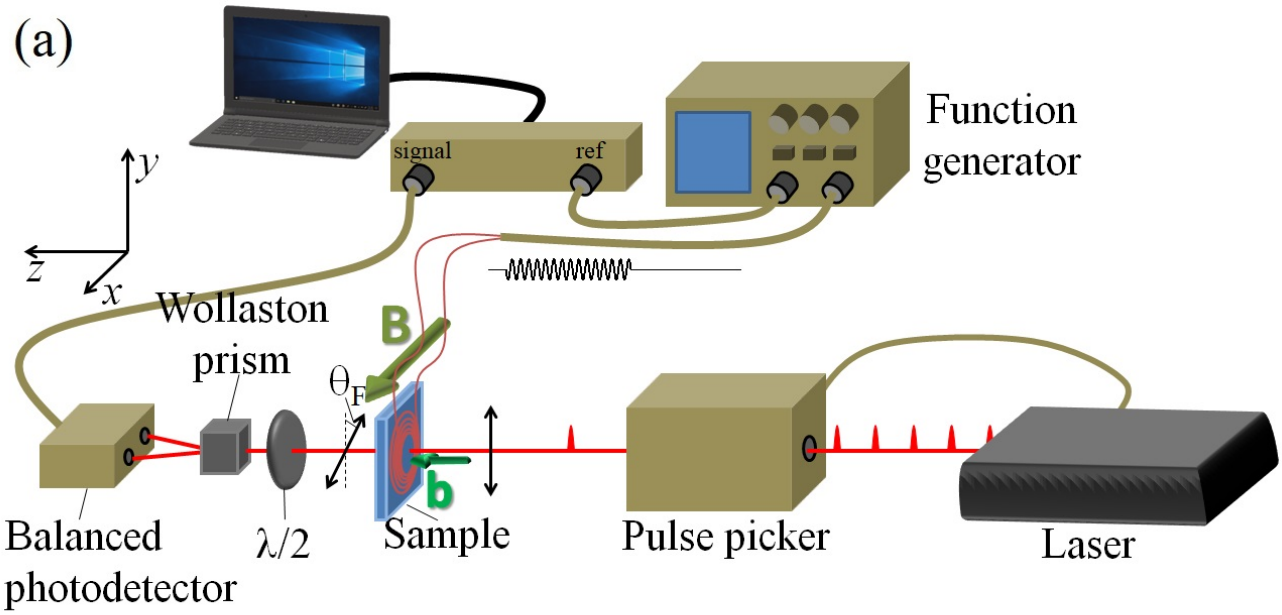
прецессии ограничивается низким временным разрешением детекторов ФЛ. С другой стороны, рамановское гетеродинное детектирование труднопримени́мо для изучения спиновых свойств резидентных электронов.

В настоящей главе на примере объемного полупроводника n-типа GaAs будет показано что метод накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения можно обобщить на использование накачки быстро меняющимся, в том числе РЧ, магнитным полем и оптического зондирования [A7, A4]. Применяя различные протоколы РЧ поля это позволит измерять все три основные времени спиновой релаксации T_1, T_2 и T_2^*. Уровень сигнала при спиновой ориентации РЧ полем определяется равновесной спиновой поляризацией во внешнем поле, а она, в свою очередь, зависит от отношения зеемановской энергии E_Z и термической энергии $k_\mathrm{B}T$ и для не слишком больших магнитных полей является очень малой величиной. Однако спиновую поляризацию, на которую влияет РЧ поле, можно увеличить с помощью дополнительной оптической подсветки циркулярно поляризованным светом, что ведет к увеличению сигнала в комбинированном методе накачки–зондирования [A4].

4.2 Схема эксперимента

В экспериментах, приведенных в данной главе, в качестве образца использовался объемный слой GaAs толщиной 350 мкм, легированный кремнием, так что концентрация свободных электронов составляла 1.4×10^{16} см$^{-3}$. Это значение находится вблизи порога перехода металл–изолятор и соответствует наибольшим временам спиновой релаксации в нулевом магнитном поле (200-300 нс) [15]. Этот образец – яркий пример однородной системы, где динамическое усреднение устраняет разброс частот прецессии электронов и спиновый ансамбль характеризуется временем спиновой дефазировки T_2^*, совпадающим со временем спиновой когерентности индивидуальных электронов T_2.

Общая схема эксперимента, используемая с незначительными вариациями практически во всех радиооптических методах исследования спиновой динамики, представленных в данной и последующих главах приведена на Рис. 4.1(a). Схема достаточна проста в реализации и фото соответствующей установки приведено на Рис. 4.1(b). В этих экспериментах образец помещен в криостат для достижения гелиевых температур. В части экспериментов использовался проточный криостат Oxford Instruments MicrostatHe-R, позволяющий достигать температур образца $5 - 300$ K (номинально $3.5 - 300$ K, однако реальная температура образца была на 1.5 K выше измеряемой). При этом образец находился в вакууме и крепился серебряной пастой к холодному держателю. В другой части экспериментов использовался



(b)

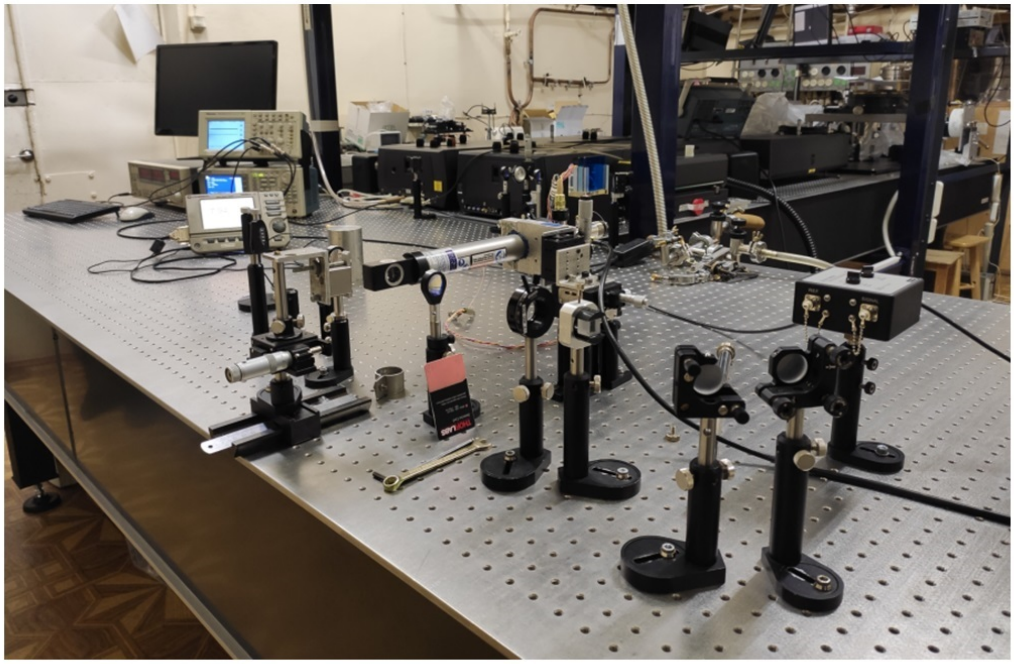


Рис. 4.1: (a) Схема радиооптического эксперимента. (b) Фото экспериментальной установки.

заливной криостат фирмы RTI, при этом образец находился в газообразном гелии, а для достижения низких температур (до 2 K) – в жидком гелии. Криостат обеспечивал температурный контроль от $2-300$ K. К образцу прикладывалось магнитное поле с помощью постоянного магнита из сплава NdFeB в форме куба с длиной грани 30 мм. Величина магнитного поля менялась посредством изменения расстояния от магнита до образца, его направление менялось посредством изменения ориентации магнита. Магнитное поле контролировалось с помощью датчика Холла и дополнительно посредством его расчета исходя из известных размера магнита, его остаточной намагниченности и расстояния до образца.

Для приложения РЧ поля была изготовлена катушка из медной проволоки толщиной 0.1 мм. Внутренний диаметр катушки был менее 1 мм, тогда как внешний диаметр катушки зависил от числа витков и не превышал 3 мм. В экспериментах данной главы использовались катушки с числом витков $N = 30$, в последующих двух главах для уменьшения индуктивного сопротивления и достижения большей амплитуды РЧ поля на больших частотах использовались катушки с $N = 10$. На катушку с помощью функционального генератора Tektronix AFG3152 подавалось напряжения, форма временного профиля которого зависела от типа проводимого эксперимента. Максимальная частота синусоидального напряжения, достижимая данным генератором составляла 150 МГц. Поле, создаваемое РЧ катушкой в ее центре оценивалось следующим образом. Поле, создаваемое одним витком катушки радиуса r, через который протекает ток i, равно $b_1 = \mu_0 i/2r$. Полное поле, создаваемое N витками равно $b = \mu_0 Ni/2r$. Поток проходящий через все N витков, который определяет индуктивность катушки L, равен $\Phi \approx \pi r^2 bN = \pi\mu_0 irN^2/2$, соответственно $L = \Phi/i \approx \pi\mu_0 rN^2/2$. Здесь приближение связано с неоднородностью поля внутри катушки. Если на катушку прикладывается квазистационарное напряжение U, то ток через катушку будет определяться внутренним сопротивлением генератора $R_{\text{in}} = 50$ Ом (омическое сопротивление катушки много меньше), $i = U/R_{\text{in}}$ и поле в центре катушки равно $b = \mu_0 NU/2rR_{\text{in}}$. В случае подачи на катушку синусоидального напряжения с частотой f_{rf} и амплитудой U_{rf}, ток определяется как R_{in}, так и индуктивным сопротивлением $2\pi f_{\text{rf}} L$, $i = U_{\text{rf}}/\sqrt{R_{\text{in}}^2 + (2\pi f_{\text{rf}} L)^2}$ и в случае относительно больших частот $f_{\text{rf}} \gg R_{\text{in}}/2\pi L$, $i \approx U_{\text{rf}}/2\pi f_{\text{rf}} L$. При этом поле в центре катушки $b = U_{\text{rf}}/2\pi^2 f_{\text{rf}} r^2 N$. Используя приведенные формулы при максимальном напряжении генератора $U = 10$ В, можно прийти к выводу, что в большинстве экспериментов использовалось поле катушки $b \sim 1$ mT.

Далее на образец подавалось излучение импульсного титан-сапфирового лазера. В большинстве экспериментов использовался лазер Mira900 фирмы Coherent, генерирующий импульсы длительностью ~ 2 пс. В некоторых экспериментах использовался лазер TiF-100

фирмы ABECTA, генерирующий импульсы длительностью ~ 150 фс. Лазеры имели частоту повторения $f_o = 76.4$ и 77.0 МГц, соответственно, (период повторения $T_o \approx 13$ нс) и перестраивались по длине волны в диапазоне 710-900 нм. При исследовании ионов Ce^{3+} в решетке YAG в следующих двух главах оптическая частота излучения лазера удваивалась с использованием нелинейного кристалла для получения длины волны 444 нм. При изучении $n - GaAs$ в этой и следующей главе использовалось основное излучение лазера на длине волны 825-830 нм. При этом для уменьшения частоты следования оптических импульсов f_o использовался прореживатель импульсов фирмы Coherent.

В экспериментах *радиооптической накачки–зондирования*, описанных в данной главе, со спиновой накачкой РЧ импульсом и зондированием оптическим импульсом лазерное излучение имело линейную поляризацию, при этом измерялся угол фарадеевского вращения этой поляризации после прохождения излучения через образец с использованием стандартной схемы с призмой Волластона и балансным детектором Nirvana. В этих экспериментах импульсы напряжения РЧ поля синхронизировались с лазерными импульсами и между ними изменялась задержка электронно с помощью генератора. Причем частота повторений РЧ импульсов была в 2 меньше f_o, а синхронное детектирование усилителем Stanford Research SR830 осуществлялось на частоте $f_o/2$ так, что фактически измерялась разность сигналов фарадеевского вращения с и без РЧ импульса. В этих экспериментах период следования импульсов был много больше, чем времена спиновой релаксации так, чтобы спиновая поляризация, созданная предыдущим импульсом затухала к приходу следующего импульса. Отметим, что идея синхронизации РЧ (микроволнового) поля и оптических (или рентгеновских) импульсов используется также в технике детектирования ферромагнитного резонанса, при этом измеряется не динамика, а спектр прецессии намагниченности [224, 225].

В следующих параграфах и главах будет обсуждаться эксперименты, которые будут отличаться направлением постоянного поля $\mathbf{B}$, временным профилем поля РЧ катушки, и поляризацией лазерных импульсов. Эти параметры приведены в таблице 4.1.

Эксперимент	Определяемый параметр	Направл. B	Профиль РЧ поля	Поляр. лазера
rf-opt p-p	T_1	Faraday	rect pulse	lin
rf-opt p-p	T_2^*	Voigt	rect pulse	lin
rf-opt p-p	T_2	Voigt	sin pulse	lin
РСУ–ЭПР, СРСУ (глава 5)	T_2	Voigt	sin mod	ell
РСИ (глава 6)	T_1	Faraday-Voigt	sin mod	ell

Таблица 4.1: Сводная таблица экспериментальных конфигураций, используемых в радиооптических экспериментах, приведенных в данной главе и следующих главах. Используемые сокращения: rf-opt p-p – радиооптический метод накачки–зондирования, sin pulse – импульс синусоидального поля, rect pulse – прямоугольный импульс, sin mod синусоидальное РЧ поле, промодулированное по амплитуде, ell – эллиптическая поляризация, lin – линейная, СРСУ – стимулированное резонансное спиновое усиление, РСИ – резонансная спиновая инерция.

4.3 Радиооптический метод накачки–зондирования на примере n-GaAs

В магнитном поле $\mathbf{B}_{\rm tot}$, которое складывается из суммы постоянного поля и поля РЧ катушки $\mathbf{B}_{\rm tot} = \mathbf{B} + \mathbf{b}(t)$ возникает зеемановское расщепление спиновых уровней электрона, соответствующее $E_{\rm Z} = |g|\mu_{\rm B}B_{\rm tot}$. Равновесное распределение электронов по спиновым уровням можно описать функцией Больцмана $f_{\rm B}(E) = \exp(-E/k_{\rm B}T)$ для невырожденного электронного газа. Однако в рассматриваемой в данном параграфе системе n-GaAs с концентрацией электронов $n_{\rm e} = 1.4 \times 10^{16}$ см$^{-3}$ при низких температурах электронный газ является вырожденным и характеризуется распределением Ферми-Дирака $f(E) = \{\exp[(E-\mu)/k_{\rm B}T] + 1\}^{-1}$, где μ – химический потенциал, который определяется концентрацией электронов и температурой, и в пределе $T \to 0$ совпадает с энергией Ферми $\epsilon_{\rm F} = \pi^2\hbar^2(3n_{\rm e})^{2/3}/2m$, где m – масса электрона. Как следствие этого распределения нижний спиновый уровень заполнен несколько больше чем верхний и возникает равновесная спиновая поляризация, направленная параллельно магнитному полю, которую можно оценить усреднив спиновую поляризацию по всем спиновым и импульсным состояниям:

$$\mathbf{S}_{\rm st} = \frac{\mathbf{B}_{\rm tot}}{B_{\rm tot}}\frac{1}{n_{\rm e}}\sum_{S=\pm 1/2}\int \frac{S d\Gamma}{\exp(\frac{E(k)+g\mu_{\rm B}BS-\mu}{k_{\rm B}T})+1} \approx -\frac{g\mu_{\rm B}\mathbf{B}_{\rm tot}}{2n_{\rm e}}\int \frac{\partial f}{\partial \mu}|_{\mu=\mu_0} d\Gamma = -\frac{g\mu_{\rm B}}{4n_{\rm e}}\frac{\partial n(\mu,T)}{\partial \mu}|_{\mu=\mu_0}\mathbf{B}_{\rm tot}, \quad (4.1)$$

где интегрирование $d\Gamma$ ведется по фазовому пространству, $n(\mu, T)$ – концентрация электронов, зависящая от химического потенциала и температуры, так что $n(\mu_0, T) = n_{\rm e}$ – фик-

сированная концентрация электронов в образце и мы учли что $|g|\mu_{\rm B}B \ll k_{\rm B}T, \epsilon_{\rm F}$. Таким образом,

$$\mathbf{S}_{\rm st} = \chi \mathbf{B}_{\rm tot}, \tag{4.2}$$

$$\chi \approx -\frac{g\mu_{\rm B}}{4n_e}\frac{\partial n(\mu,T)}{\partial \mu}|_{\mu=\mu_0} \approx -g\mu_{\rm B} \times \begin{cases} \frac{1}{4k_{\rm B}T}, & k_{\rm B}T \gg \epsilon_{\rm F} \\ \frac{3}{8\epsilon_{\rm F}}, & k_{\rm B}T \ll \epsilon_{\rm F}. \end{cases} \tag{4.3}$$

Отметим, что мы имеем дело с нормированной спиновой поляризацией. Соответствующие значения спиновой поляризации (например, $S_{\rm st}$) уместно сравнивать с 1/2. При резком изменении магнитного поля за счет поля РЧ катушки $\mathbf{b}(t)$, резко изменяется стационарная спиновая поляризация $\mathbf{S}_{\rm st}$, и происходит релаксация спиновой поляризации к новому значению $\mathbf{S}_{\rm st}$. На этом факте основан метод возбуждения спиновой динамики с помощью РЧ катушки, которая затем будет детектироваться оптически измерением фарадеевского вращения. Спиновая динамика в этом процессе описывается уравнением Блоха [64, 164]:

$$\frac{d\mathbf{S}}{dt} = \frac{g\mu_{\rm B}}{\hbar}\mathbf{B}_{\rm tot} \times \mathbf{S} - \hat{\gamma}(\mathbf{S} - \mathbf{S}_{\rm st}), \tag{4.4}$$

где $\hat{\gamma}$ – это релаксационная матрица, которая сводится к $1/T_1$ для компоненты $\mathbf{S}$ вдоль $\mathbf{B}_{\rm tot}$ и к $1/T_2$ для поперечной компоненты $\mathbf{S}$.

4.3.1 Скачкообразное изменение магнитного поля: T_1 и T_2^*

Решение уравнения Блоха в постоянном поле $\mathbf{B}_{\rm tot}$ описывается уравнением

$$\begin{aligned}\mathbf{S}(t) = \mathbf{S}_{\rm st} + [(\mathbf{S}(0)\mathbf{e})\mathbf{e} - \mathbf{S}_{\rm st}]\exp(-\frac{t}{T_1})] \\ + [\mathbf{S}(0) - (\mathbf{S}(0)\mathbf{e})\mathbf{e}]\cos(\omega_{\rm L}t)\exp(-\frac{t}{T_2}) + \mathbf{e}\times\mathbf{S}(0)\sin(\omega_{\rm L}t)\exp(-\frac{t}{T_2}),\end{aligned} \tag{4.5}$$

где $\mathbf{e} = \boldsymbol{\omega}_{\rm L}/\omega_{\rm L}$. Так если поле $\mathbf{b}(t)$ резко увеличивается от 0 до $\mathbf{b}$ в момент $t = 0$, то спиновая динамика описывается уравнением (4.5), где $\mathbf{S}(0) = \chi\mathbf{B}$, $\mathbf{S}_{\rm st} = \chi(\mathbf{b} + \mathbf{B})$ и $\mathbf{B}_{\rm tot} = \mathbf{b} + \mathbf{B}$. В частности, если $\mathbf{B} \parallel \mathbf{b}$, то происходит продольная релаксация со временем T_1. Если же резко прикладывается поле $\mathbf{b} \perp \mathbf{B}$, то происходит прецессия спиновой поляризации с ларморовской частотой $\boldsymbol{\omega}_{\rm L} = g\mu_{\rm B}\mathbf{B}/\hbar$ ($b \ll B$), затухающая со временем T_2. При этом мы измеряем спиновую поляризацию ансамбля электронов, которая за счет разброса частот $\delta\omega_{\rm L}$ затухает со временем T_2^*, так что $1/T_2^* = 1/T_2 + \delta\omega_{\rm L}$. Здесь мы везде предполагаем $b \ll B$. Изменение спиновой компоненты вдоль нормали к образцу [ось z, Рис. 4.1(а)] при $t > 0$ в этих двух

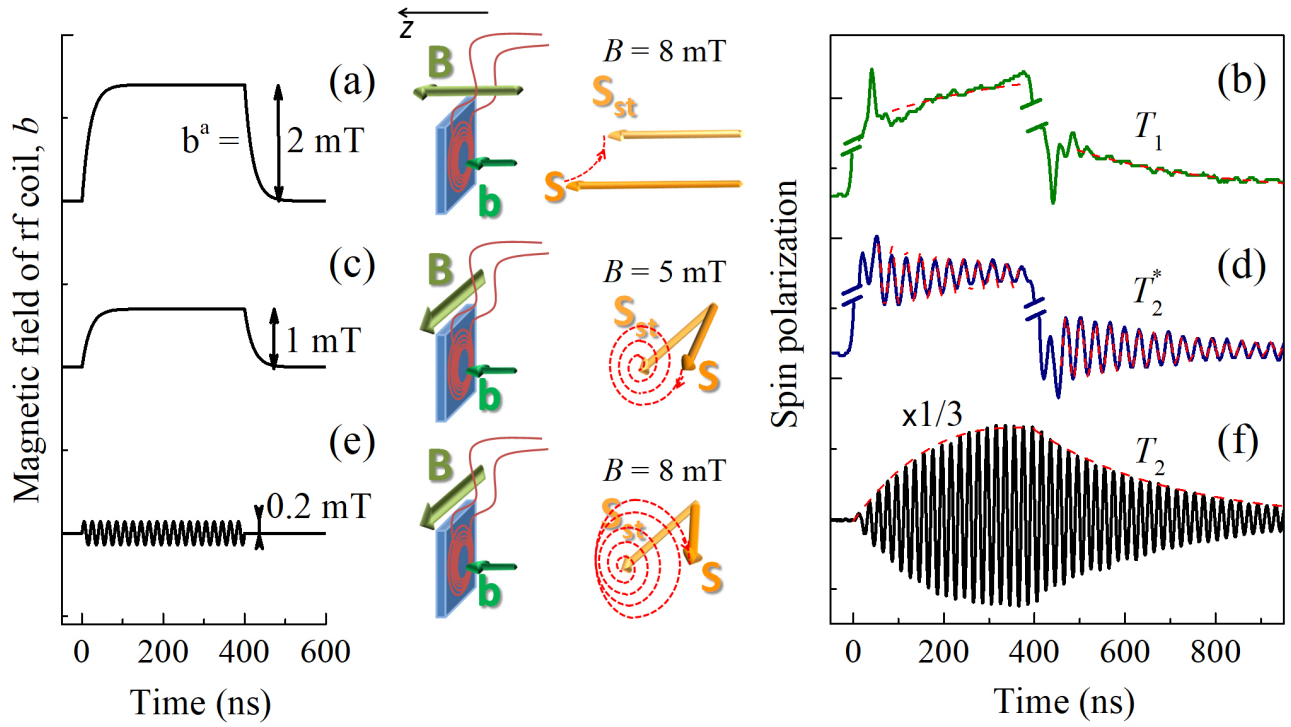


Рис. 4.2: Измерение времен спиновой релаксации T_1, T_2^* и T_2 [A4]. Слева направо: временные профили поля РЧ катушки $b(t)$, схематическое изображение геометрии эксперимента и эволюция спиновой поляризации, соответствующие измеренные динамики спиновой поляризации электрона вдоль оси z для n-GaAs. (a), (b) Постоянное поле $\mathbf{B}$ в геометрии Фарадея и ступенчатый профиль $b(t)$ позволяет измерить время T_1. (c), (d) $\mathbf{B}$ направлено в геометрии Фогта и ступенчатый профиль $b(t)$ позволяют измерить время T_2^*. (e), (f) $\mathbf{B}$ в геометрии Фогта и синусоидальный профиль $b(t)$ с частотой резонансной с частота Лармора $[\omega_\mathrm{L} = 2\pi\times$ (50 МГц)] позволяет измерить время T_2. Красные пунктирные линии на панелях (b), (d), (f) показывают расчетные профили. $T = 2$ К.

случаях описывается уравнениями

$$\Delta S_z(t) = \chi b[1 - \exp(-t/T_1)], \mathbf{B} \parallel \mathbf{b} \tag{4.6}$$

$$\Delta S_z(t) = \chi b \cos(\omega_\mathrm{L} t) \exp(-t/T_2^*), \mathbf{B} \perp \mathbf{b}. \tag{4.7}$$

Таким образом, для измерения времени продольной спиновой релаксации T_1 необходимо приложить постоянное магнитное поле $\mathbf{B}$ в геометрии Фарадея параллельно нормали к образцу и оптическому лучу, при этом также $\mathbf{B} \parallel \mathbf{b}$, и подать на РЧ катушку прямоугольный импульс напряжения [Рис. 4.2(a)]. Далее измерение спиновой динамики можно проводить, посредством детектирования фарадеевского вращения линейной поляризации лазерного импульса с контролируемой задержкой относительно импульса напряжения, как это описано в предыдущем параграфе. При резком (за время ~ 20 нс) увеличении поля РЧ катушки от 0 до 2 мТл и затем после такого же резкого выключения поля, спиновая поляризация экспо-

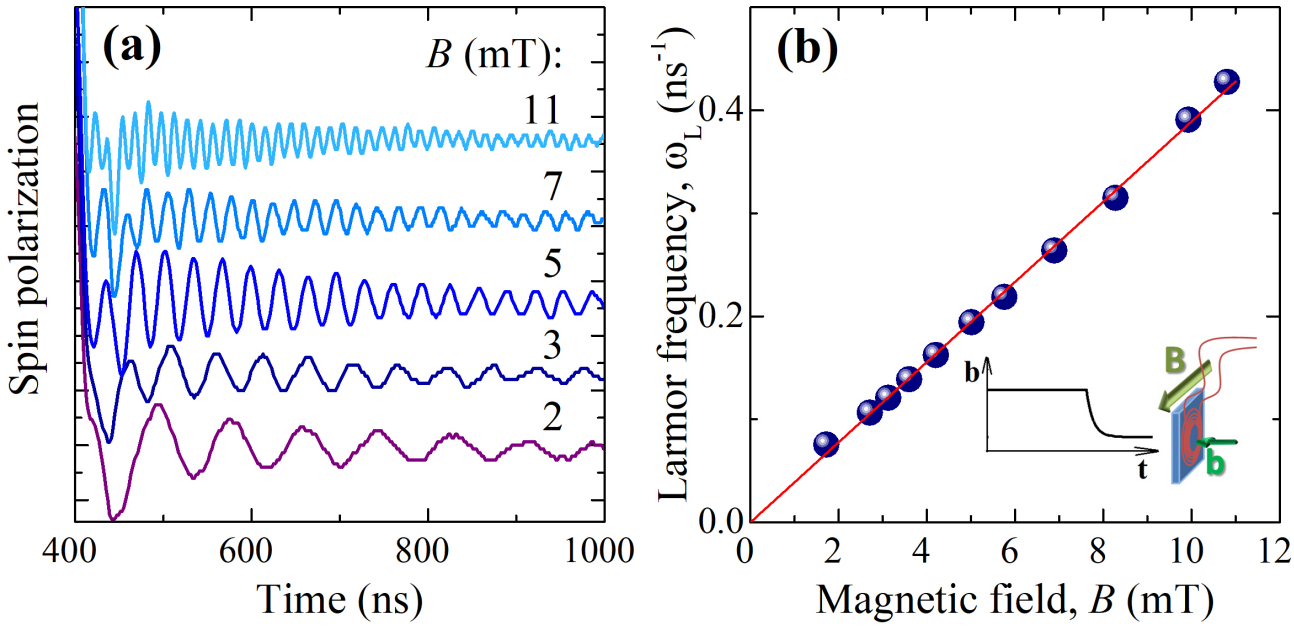


Рис. 4.3: (a) Спиновая динамика электронов в n-GaAs после резкого изменения поля РЧ катушки $b(t)$ при разных значения постоянного поля B, ориентированного в геометрии Фогта. (b) Зависимость ларморовской частоты спиновой прецессии от магнитного поля B. Красная линия – линейная аппроксимация экспериментальной зависимости, позволяющая определить модуль g фактора. Во вставке показан временной профиль $b(t)$ и геометрия эксперимента. $T = 2$ K [A4].

ненциально со временем T_1 стремится к своему новому значению [Рис. 4.2(b)] в соответствии с формулой (4.6). Пунктирной красной линией на рисунке показана аппроксимация спиновой динамики экспоненциальной функцией со временем $T_1 = 300$ нс близким к измеренному с помощью расширенного метода накачки–зондирования с измерением фарадеевского вращения [A16]. Также в измеряемый сигнал дает вклад фарадеевское вращение, которое неизбежно присутствует в кристалле GaAs и не связано со спиновой поляризацией резидентных носителей. Этот вклад легко выделить так как он пропорционален приложенному магнитному полю и мгновенно следует за $b(t)$. Биения и выброс сразу после изменения поля связаны с переходными процессами в РЧ контуре.

Для измерения поперечного времени дефазировки спинового ансамбля T_2^* необходимо приложить постоянное магнитное поле $\mathbf{B}$ в геометрии Фогта перпендикулярно нормали к образцу и оптическому лучу, при этом также $\mathbf{B} \perp \mathbf{b}$, и подать на РЧ катушку прямоугольный импульс напряжения [Рис. 4.2(c)]. В этой геометрии резкое изменение магнитного поля $\mathbf{b}$ инициируют прецессию спинового ансамбля, которая затухает со временем T_2^* [Рис. 4.2(d)]. Измеренная спиновая динамика аппроксимирована формулой (4.7). Эта аппроксимация показана пунктирной красной линией на Рис. 4.2(d) и дает время $T_2^* = 300$ нс в хорошем соответствии с результатом, полученным расширенным методом накачки–зондирования с

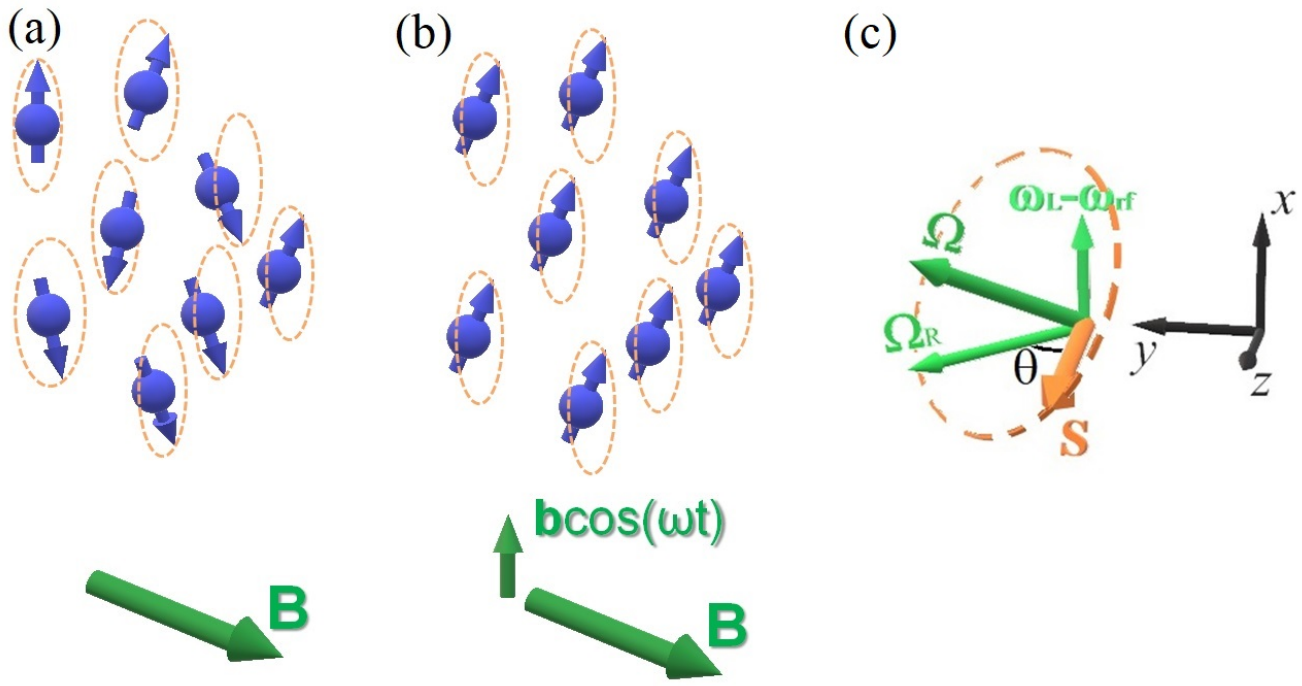


Рис. 4.4: (a)-(b) Схематическое изображение классической прецессии спинов в электронном ансамбле вокруг магнитного поля. Свободная прецессия имеет хаотичный характер (a), тогда как резонансное РЧ поле синхронизует прецессию (b). (c) Прецессия спина в системе отсчета, вращающейся с угловой скоростью $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{rf}}$

измерением фарадеевского вращения [A16]. При изменении постоянного магнитного поля увеличивается частота ларморовской спиновой прецессии [Рис. 4.3(a)]. Зависимость ларморовской частоты от магнитного поля [Рис. 4.3(b)] хорошо описывается линейной функцией и позволяет определить модуль g фактора электрона $|g| = 0.44$, что хорошо согласуется с другими измерениями в n-GaAs [A16, A12].

Отметим, что амплитуда сигнала в этих двух экспериментах определяется изменением равновесной спиновой поляризации полем РЧ катушки $\mathbf{b}(t)$: $S \sim \chi b$. Это сама по себе малая, однако детектируемая величина.

4.3.2 Спиновая динамика в осциллирующем РЧ поле: T_2

Далее мы рассмотрим случай приложения импульса синусоидального РЧ поля к образцу, когда постоянное поле приложено в геометрии Фогта [Рис. 4.2(e)]. Для описания явлений, происходящих в этом случае, обратимся к классическому представлению о прецессии спина в магнитном поле. Изначально, несмотря на то, что частоты прецессии всех спинов в ансамбле примерно равны $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}} = g\mu_{\mathrm{b}}\mathbf{B}/\hbar$, прецессии спинов различных электронов не сфазированы и прецессирующая компонента общей спиновой поляризации близка к 0. Однако, если частота РЧ поля близка к ω_{L}, то РЧ поле “навязывает” спинам свою частоту и привязывает их по

фазе, подобно тому как вынуждающая сила “навязывает” свою частоту и привязывает по фазе маятник (Рис. 4.4). Таким образом, с течением времени возникает макроскопическая спиновая поляризация, прецессирующая вокруг $\mathbf{B}$ [Рис. 4.2(f)]. После прекращения РЧ импульса спиновая поляризация продолжает прецессию, но ее амплитуда затухает. Далее будет показано, что как возрастание, так и затухание амплитуды спиновой поляризации является экспоненциальным [красная пунктирная линия на Рис. 4.2(f)] и характеризуется временем близким к T_2.

Динамика электронной спиновой поляризации под действием в РЧ поля описывается уравнением (4.4). При этом вектор $\mathbf{b}(t) = b\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \cos(\omega_{\rm rf}t - \varphi_{\rm rf}) \end{pmatrix}$ в системе координат, показанной на Рис. 4.1(a). Здесь для общности мы ввели фазу РЧ поля $\varphi_{\rm rf}$, определяющую его состояние в момент $t = 0$. Вектор $\mathbf{b}(t)$ можно представить как сумму двух компонент, вращающихся вокруг оси x с частотами $\boldsymbol{\omega}_{\rm rf} = \omega_{\rm rf}\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$ и $-\boldsymbol{\omega}_{\rm rf}$: $\mathbf{b}(t) = (b/2)\begin{pmatrix} 0 \\ -\sin(\omega_{\rm rf}t - \varphi_{\rm rf}) \\ \cos(\omega_{\rm rf}t - \varphi_{\rm rf}) \end{pmatrix} + (b/2)\begin{pmatrix} 0 \\ \sin(\omega_{\rm rf}t - \varphi_{\rm rf}) \\ \cos(\omega_{\rm rf}t - \varphi_{\rm rf}) \end{pmatrix}$. Отметим, что частота $\boldsymbol{\omega}_{\rm rf}$ близка к ларморовской частоте $\boldsymbol{\omega}_{\rm L}$, тогда как частота $-\boldsymbol{\omega}_{\rm rf}$ далека от резонанса и в приближении вращающейся волны второй компонентой можно пренебречь [164]. Перепишем уравнение 4.4 в виде:

$$\frac{d\mathbf{S}}{dt} = (\boldsymbol{\omega}_{\rm L} + \boldsymbol{\Omega}_{\rm R}(t)) \times \mathbf{S} - \hat{\gamma}(\mathbf{S} - \mathbf{S}_{\rm st}), \tag{4.8}$$

где

$$\boldsymbol{\Omega}_{\rm R}(t) = \Omega_{\rm R}\begin{pmatrix} 0 \\ -\sin(\omega_{\rm rf}t - \varphi_{\rm rf}) \\ \cos(\omega_{\rm rf}t - \varphi_{\rm rf}) \end{pmatrix} \tag{4.9}$$

частота Раби, $\Omega_{\rm R} = g\mu_{\rm B}b/2\hbar$, $\mathbf{S}_{\rm st} = \chi B\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$, и здесь $\hat{\gamma} = \begin{pmatrix} 1/T_1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/T_2 & 0 \\ 0 & 0 & 1/T_2 \end{pmatrix}$. Для решения этого уравнения перейдем во вращающуюся систему отсчета с угловой скоростью $\boldsymbol{\omega}_{\rm rf}$ посредством замены переменных

$$\mathbf{S} = \hat{R}\mathbf{S}' \tag{4.10}$$

$$\hat{R} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\omega_{\rm rf}t) & -\sin(\omega_{\rm rf}t) \\ 0 & \sin(\omega_{\rm rf}t) & \cos(\omega_{\rm rf}t) \end{pmatrix}, \hat{R}^{-1} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\omega_{\rm rf}t) & \sin(\omega_{\rm rf}t) \\ 0 & -\sin(\omega_{\rm rf}t) & \cos(\omega_{\rm rf}t) \end{pmatrix} \tag{4.11}$$

и умножения уравнения (4.8) слева на $\hat{R}^{-1}$. В результате этих преобразований уравнение Блоха можно переписать как

$$\frac{d\mathbf{S}'}{dt} = \mathbf{\Omega} \times \mathbf{S}' - \hat{\gamma}(\mathbf{S}' - \mathbf{S}_{\rm st}), \tag{4.12}$$

где частота $\mathbf{\Omega} = \begin{pmatrix} \Delta\omega_{\rm L} \\ \Omega_{\rm R}\sin\varphi_{\rm rf} \\ \Omega_{\rm R}\cos\varphi_{\rm rf} \end{pmatrix}$, $\Omega = \sqrt{\Delta\omega_{\rm L}^2 + \Omega_{\rm R}^2}$ уже не зависит от времени, здесь $\Delta\omega_{\rm L} = \omega_{\rm L} - \omega_{\rm rf}$. Решение данного уравнения можно представить в виде

$$\mathbf{S}'(t) = \mathbf{S}''(t) + \frac{\chi B}{1 + \Omega_{\rm R}^2 T_1 T_2 + \Delta\omega_{\rm L}^2 T_2^2} \begin{pmatrix} 1 + \Delta\omega_{\rm L}^2 T_2^2 \\ \Delta\omega_{\rm L}\Omega_{\rm R} T_2^2 \sin\varphi_{\rm rf} + \Omega_{\rm R} T_2 \cos\varphi_{\rm rf} \\ \Delta\omega_{\rm L}\Omega_{\rm R} T_2^2 \cos\varphi_{\rm rf} - \Omega_{\rm R} T_2 \sin\varphi_{\rm rf} \end{pmatrix}, \tag{4.13}$$

где постоянная компонента в уравнении (4.13) является частным решением уравнения (4.12), а $\mathbf{S}''(t)$ – решение однородного уравнения

$$\frac{d\mathbf{S}''}{dt} = \begin{pmatrix} -1/T_1 & -\Omega_{\rm R}\cos\varphi_{\rm rf} & \Omega_{\rm R}\sin\varphi_{\rm rf} \\ \Omega_{\rm R}\cos\varphi_{\rm rf} & -1/T_2 & -\Delta\omega_{\rm L} \\ -\Omega_{\rm R}\sin\varphi_{\rm rf} & \Delta\omega_{\rm L} & -1/T_2 \end{pmatrix} \mathbf{S}''. \tag{4.14}$$

Уравнение (4.14) имеет аналитическое решение, которое, однако, слишком громоздко. В частности, собственные значения матрицы в этом уравнении, определяющие частоты спиновой прецессии, являются решениями кубического уравнения. Мы рассмотрим частный случай изотропного времени спиновой релаксации $T_1 = T_2 = \tau_{\rm s}$, что справедливо для однородной спиновой системы, которой является рассматриваемый образец n-GaAs в малом магнитном поле. Тогда уравнение (4.14) описывает вращение спиновой поляризации с частотой $\mathbf{\Omega}$ и ее затухание со временем $\tau_{\rm s}$:

$$\mathbf{S}''(t) = \{(\mathbf{S}''(0)\mathbf{e})\mathbf{e} + [\mathbf{S}''(0) - (\mathbf{S}''(0)\mathbf{e})\mathbf{e}]\cos(\Omega t) + \mathbf{e} \times \mathbf{S}''(0)\sin(\Omega t)\}\exp(-t/\tau_{\rm s}), \tag{4.15}$$

где $\mathbf{e} = \mathbf{\Omega}/\Omega$. Если при $t < 0$ РЧ поле было выключено и его включили в момент $t = 0$, так что $\varphi_{\rm rf} = 0$, то $\mathbf{S}(0) = \mathbf{S}'(0) = \mathbf{S}_{\rm st}$, $\mathbf{S}''(0) = \chi B \Omega_{\rm R}\tau_{\rm s}/(1+\Omega^2\tau_{\rm s}^2)\begin{pmatrix}\Omega_{\rm R}\tau_{\rm s}\\ -1\\ -\Delta\omega_{\rm L}\tau_{\rm s}\end{pmatrix}$.

Формулы (4.10),(4.11),(4.13),(4.15) дают решение для движения спина в осциллирующем магнитном поле:

$$\mathbf{S}(t) = \chi B \frac{\Omega_{\rm R}\tau_{\rm s}}{\sqrt{1+\Omega^2\tau_{\rm s}^2}} \begin{pmatrix} \frac{\Omega_{\rm R}}{\Omega}\sin(\Omega t+\phi) \\ -\cos(\Omega t+\phi)\cos(\omega_{\rm rf}t) + \frac{\Delta\omega_{\rm L}}{\Omega}\sin(\Omega t+\phi)\sin(\omega_{\rm rf}t) \\ -\cos(\Omega t+\phi)\sin(\omega_{\rm rf}t) - \frac{\Delta\omega_{\rm L}}{\Omega}\sin(\Omega t+\phi)\cos(\omega_{\rm rf}t) \end{pmatrix} \exp(-\frac{t}{\tau_{\rm s}}) + \chi B \frac{\Omega_{\rm R}\tau_{\rm s}\sqrt{1+\Delta\omega_{\rm L}^2\tau_{\rm s}^2}}{1+\Omega^2\tau_{\rm s}^2} \begin{pmatrix} \frac{\sqrt{1+\Delta\omega_{\rm L}^2\tau_{\rm s}^2}}{\Omega_{\rm R}\tau_{\rm s}} \\ \cos(\omega_{\rm rf}t+\psi) \\ \sin(\omega_{\rm rf}t+\psi) \end{pmatrix}, \quad (4.16)$$

где $\phi = \arccos(1/\sqrt{1+\Omega^2\tau_{\rm s}^2})$, $\psi = \arccos(1/\sqrt{1+\Delta\omega_{\rm L}^2\tau_{\rm s}^2})$. Первый член в этом уравнении описывает переходный процесс после включения РЧ поля. Второй член описывает стационарную вынужденную прецессию спина в плоскости yz на частоте РЧ поля. Амплитуда этой прецессии равна

$$S_{\rm a} = \chi B \frac{\Omega_{\rm R}\tau_{\rm s}\sqrt{1+\Delta\omega_{\rm L}^2\tau_{\rm s}^2}}{1+\Omega_{\rm R}^2\tau_{\rm s}^2+\Delta\omega_{\rm L}^2\tau_{\rm s}^2}. \quad (4.17)$$

Она имеет резонансный характер, максимальна при $\omega_{\rm rf} = \omega_{\rm L}$, а ширина резонанса определяется наибольшей из величин $1/\tau_{\rm s}$ и $\Omega_{\rm R}$. Качественно поведение спина под действием поля можно описать как раскручивание равновесной компоненты вокруг $\mathbf{B}$, что соответствует вращению спина вокруг вектора $\mathbf{\Omega}$ во вращающейся системе отсчета [Рис. 4.4(c)]. В результате этого раскручивания возникает осциллирующая компонента спина вдоль оси z, которая и измеряется в эксперименте [Рис. 4.2(f)]:

$$S_z(t) = \chi B \frac{\Omega_{\rm R}\tau_{\rm s}}{\sqrt{1+\Omega^2\tau_{\rm s}^2}} \times \Big\{ -\big[\cos(\Omega t+\phi)\sin(\omega_{\rm rf}t) + \frac{\Delta\omega_{\rm L}}{\Omega}\sin(\Omega t+\phi)\cos(\omega_{\rm rf}t)\big]\exp(-\frac{t}{\tau_{\rm s}}) + \sqrt{\frac{1+\Delta\omega_{\rm L}^2\tau_{\rm s}^2}{1+\Omega^2\tau_{\rm s}^2}}\sin(\omega_{\rm rf}t+\psi)\Big\} \quad (4.18)$$

В частности, в случае резонанса $\Delta\omega_{\rm L} = 0$

$$S_z(t) = \chi B \frac{\Omega_{\rm R}\tau_{\rm s}}{1+\Omega_{\rm R}^2\tau_{\rm s}^2}\big\{1 - \big[\cos(\Omega_{\rm R}t) - \Omega_{\rm R}\tau_{\rm s}\sin(\Omega_{\rm R}t)\big]\exp(-\frac{t}{\tau_{\rm s}})\big\}\sin(\omega_{\rm rf}t). \quad (4.19)$$

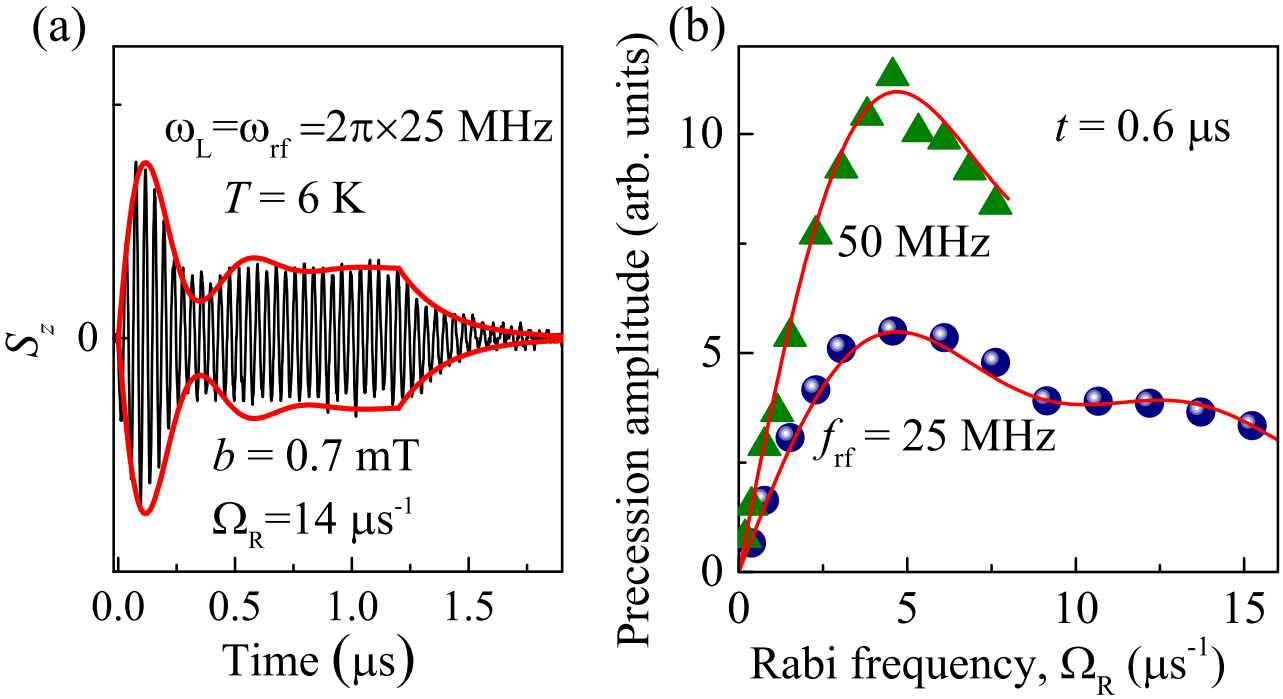


Рис. 4.5: Осцилляции Раби [A7]. (a) Динамика спиновой поляризации S_z электронов в n-GaAs при ее возбуждении РЧ импульсом достаточно большой амплитуды $b = 0.7$ мТл, длительности 1.2 мкс и частоты 25 МГц в постоянном поле $B = 4.2$ мТл. Красные линии показывают расчет согласно уравнению (4.19) в пределах импульса и экспоненциальное затухание после его окончания. (b) Зависимость амплитуды спиновой прецессии от амплитуды РЧ импульса, пересчитанной в частоту Раби, через 0.6 мкс после начала РЧ импульса для двух различных значений постоянного магнитного поля ($B = 4.2$ и 8.4 мТл), соответствующих резонансным частотам $f_{\rm rf} = 25$ и 50 МГц. Красные линии показывают расчет амплитуды согласно уравнению (4.19). (a)-(b) Температура образца $T = 6$ K.

В случае $\Omega_{\rm R} \ll 1/\tau_{\rm s}$ амплитуда осциллирующей компоненты возрастает как $1-\exp(-t/\tau_{\rm s})$, что хорошо описывает поведение, наблюдаемое в эксперименте [Рис. 4.2(f)], позволяя определить $\tau_{\rm s}$. Это же время определяется как время затухания прецессии после окончания РЧ импульса. При достаточно большой амплитуде РЧ поля b, и соответственно $\Omega_{\rm R}$, амплитуда спиновой прецессии должна проявлять затухающие биения на частоте $\Omega_{\rm R}$. Это демонстрирует Рис. 4.5(a). Также осцилляции будут наблюдаться если измерять амплитуду спиновой прецессии при фиксированной временной задержке в зависимости от амплитуды РЧ поля [Рис. 4.5(b)]. Амплитуда РЧ поля пересчитывалась из напряжения, подаваемого на катушку U и его частоты $f_{\rm rf}$ по формуле $b = U/2\pi^2 f_{\rm rf} r^2 N$ (см. раздел 4.2) с параметрами $N = 30$ и $r = 0.9$ мм. Соответствующая частота Раби $\Omega_{\rm R} = |g|\mu_{\rm B} b/2\hbar$. Экспериментальные данные хорошо описываются уравнением (4.19) [амплитуда показана красными линиями на Рис. 4.5]. Более того, увеличение постоянного поля B и соответствующее увеличение $\omega_{\rm rf}$ приводит к пропорциональному увеличению амплитуды сигнала [Рис. 4.5(b)] также в согласии с уравнением (4.19). Однако при этом максимально достижимая частота Раби обратно пропорци-

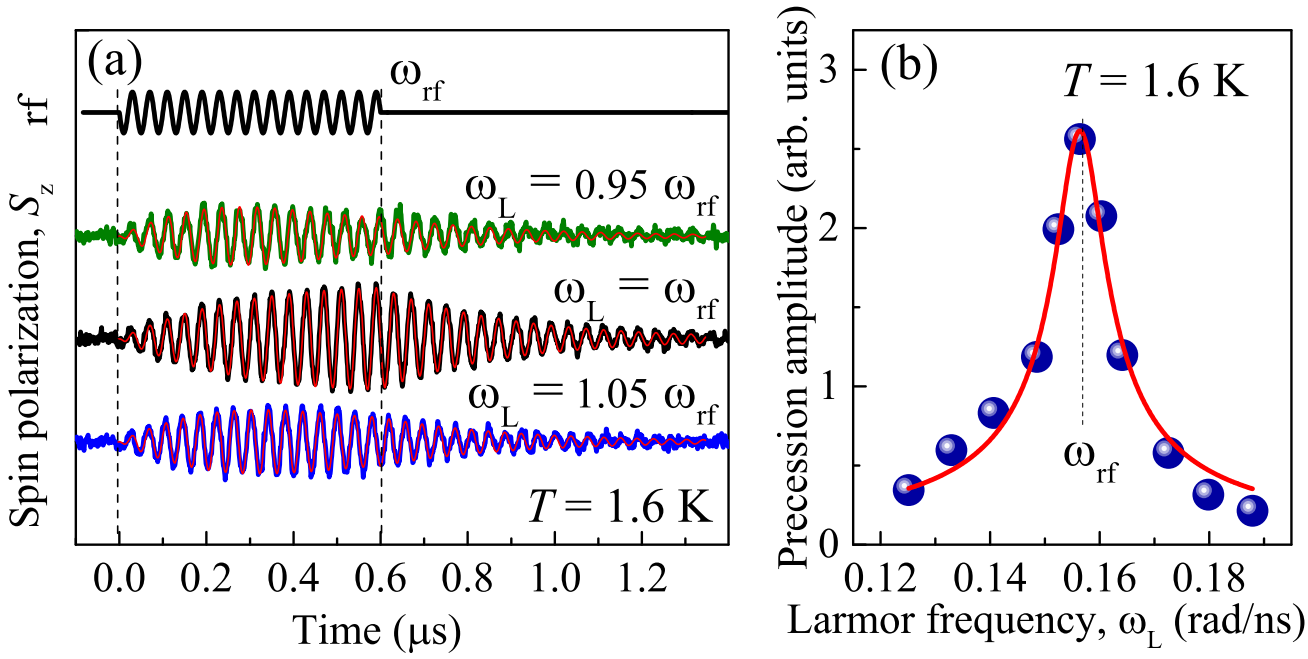


Рис. 4.6: (a) Динамика спиновой поляризации S_z электронов в n-GaAs при фиксированной частоте РЧ поля $\omega_{rf} = 2\pi \times 25$ МГц и различных ларморовских частотах, соответствующих различным значениям постоянного поля B. Верхняя панель показывает временной профиль РЧ поля. Пунктирные линии отмечают моменты начала и окончания РЧ импульса. Красные линии показывают аппроксимацию экспериментальных данных уравнениями (4.18) (РЧ поле включено) и (4.5) (свободная прецессия). (b) Зависимость амплитуды спиновой прецессии от ларморовской частоты через 0.6 мкс после начала РЧ импульса. Красная линия показывают аппроксимацию экспериментальных данных уравнением (4.17). (a)-(b) Температура образца $T = 1.6$ K [A7].

ональна частоте $f_{rf} = \omega_{rf}/2\pi$.

Рассмотрим эксперименты с отклонением ω_L от резонанса с ω_{rf}, $\Delta\omega_L \neq 0$. В этом случае даже при небольшой амплитуде РЧ поля могут наблюдаться немонотонное поведение амплитуды спиновой прецессии в период воздействия РЧ поля [Рис. 4.6(a)]. Экспериментальные данные хорошо описываются уравнением (4.18), тогда как после воздействия РЧ импульса свободное затухание спиновой поляризации описывается экспоненциально затухающей осциллирующей функцией (S_z из уравнения (4.5) с $T_1 = T_2 = \tau_s$ и начальными условиями, определяемыми спиновой поляризацией из уравнения (4.16) на момент окончания действия импульса РЧ поля). При этом отклонение от резонанса очевидно приводит к уменьшению амплитуды спиновой поляризации, что демонстрирует Рис. 4.6(b). Зависимость амплитуды спиновой прецессии от ω_L имеет резонансный характер с максимумом в $\omega_L = \omega_{rf}$ и хорошо описывается уравнением (4.17).

Отметим, что резонансный характер воздействия РЧ поля на спиновую систему [формула (4.17)] приводит к тому, что прецессия возбуждается только для спинов, частота которых совпадает с ω_{rf} с точностью до $1/\tau_s$ (при $\Omega_R \ll 1/\tau_s$). Это устраняет вклад разброса ча-

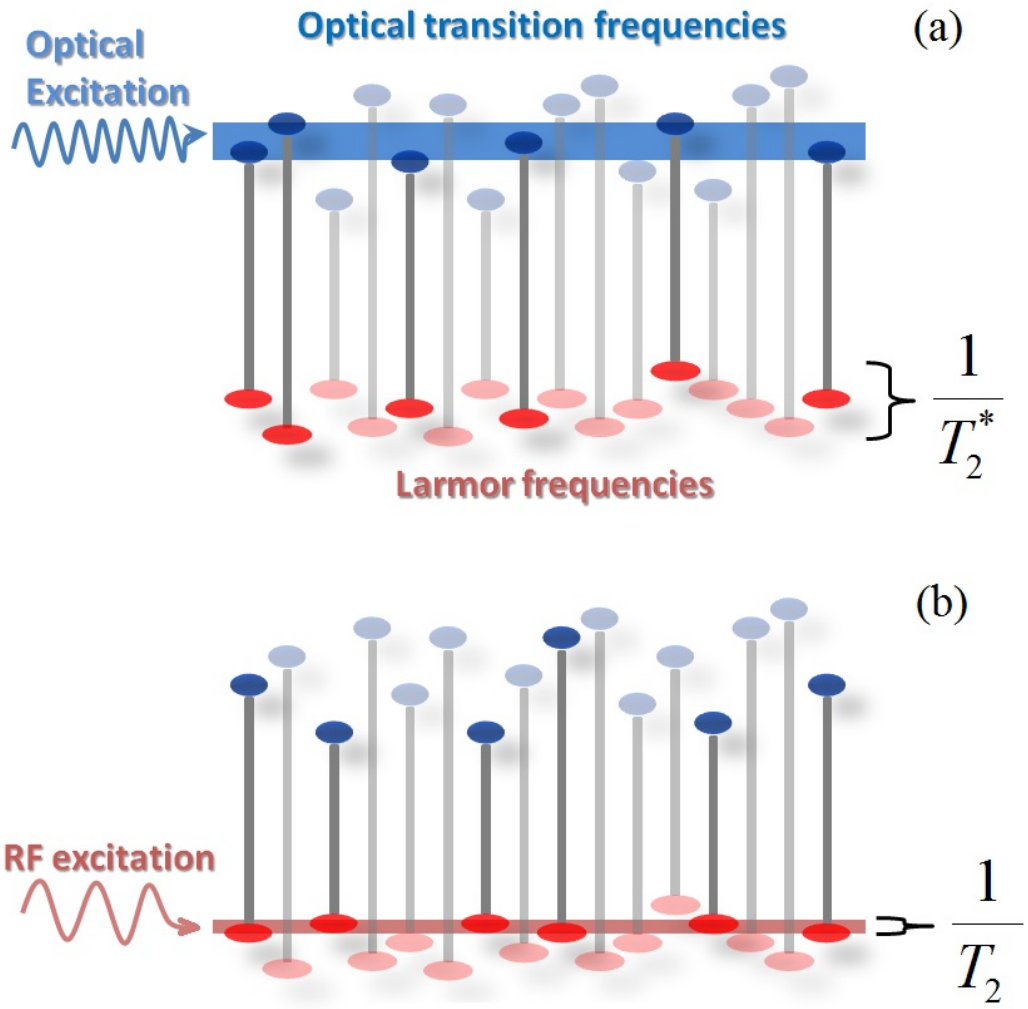


Рис. 4.7: Схематическое сравнение оптического и РЧ возбуждения электронной спиновой системы [A7]. (a) Оптический импульс ориентирует электронные состояния, энергия оптических переходов которых соответствует энергии фотона независимо от их ларморовских частот. В результате, затухание прецессии спиновой поляризации ориентированного подансамбля определяется разбросом ларморовских частот. (b) РЧ импульс резонансно воздействует и возбуждает спины с определенными ларморовскими частотами $\omega_{\rm rf} - 1/T_2 \lesssim \omega_{\rm L} \lesssim \omega_{\rm rf} + 1/T_2$. Прецессия ориентированного таким образом спинового подансамбля затухает за время близкое ко времени спиновой когерентности T_2.

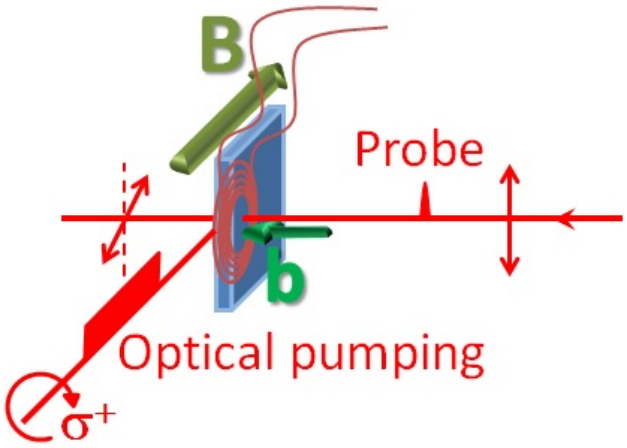


Рис. 4.8: Схема эксперимента с дополнительной подсветкой циркулярно поляризованным светом.

стот спинов, создающих макроскопическую поляризацию, прецессия которой затухает после выключения РЧ поля. Таким образом, после резонансного воздействия РЧ полем, спиновая поляризация затухает за время близкое к T_2, а не к T_2^*, как при резком единовременном изменении поля [Рис. 4.2(c),(d)] или в оптических экспериментах “накачка–зондирование” (Рис. 4.7). Это имеет большое значения в неоднородных системах, в которых $T_2^* \ll T_2$ таких как квантовые точки или объемные полупроводники с концентрацией электронов ниже перехода металл–изолятор. При этом, однако, амплитуда сигнала умножается на множитель, который можно оценить как T_2^*/T_2 за счет того, что ориентируется только часть спинов.

4.4 Увеличение сигнала с помощью дополнительной оптической подсветки

При ориентации спина осциллирующим РЧ полем максимальная амплитуда [см. формулу (4.17)] достигается в резонансе, $\Delta\omega_\mathrm{L} = 0$, а также при $\Omega_\mathrm{R} = 1/\tau_\mathrm{s}$. Максимальная амплитуда равна $\chi B/2$ (или $T_2^*\chi B/2T_2$ для неоднородной системы). Это значение существенно больше, чем амплитуда сигнала при единомоментном изменении магнитного поля χb. Тем не менее, при малых полях амплитуда $\chi B/2$ все-таки мала и сигнал может наблюдаться далеко не во всех спиновых системах. Дело в том что, что указанная амплитуда определяется равновесной спиновой поляризаций $\mathbf{S}_\mathrm{st}$ вдоль внешнего магнитного поля. Однако спиновую поляризацию вдоль поля можно создать искусственно с помощью оптической накачки вдоль

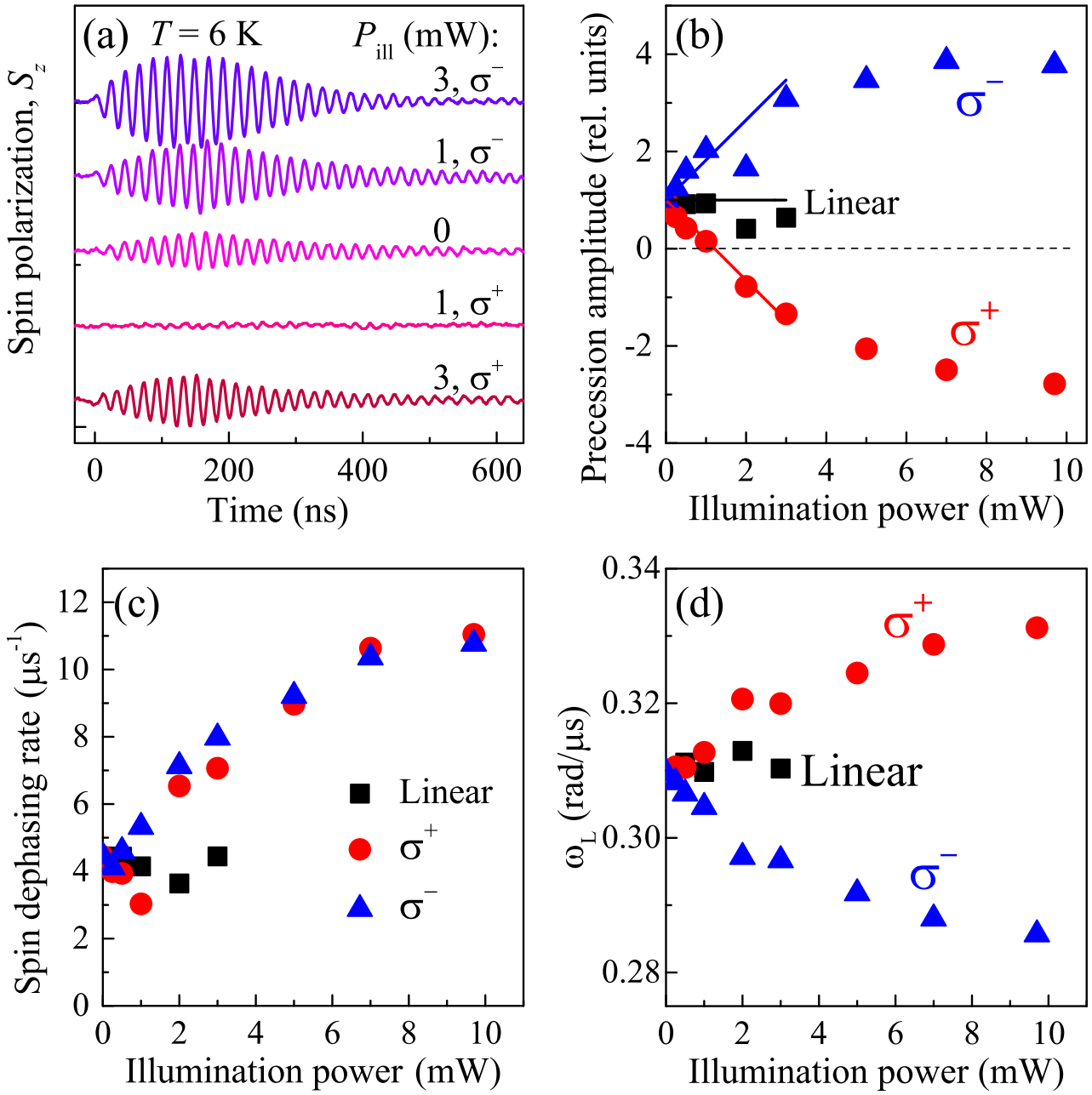


Рис. 4.9: Влияние непрерывной подсветки циркулярно поляризованным светом на динамику спиновой прецессии электронов в n-GaAs, возбуждаемую РЧ полем. (a) Динамики спиновой прецессии при различных мощностях подсветки для различных направлений ее циркулярной поляризации. (b) Зависимость амплитуды спиновой прецессии в момент выключения РЧ поля от интенсивности дополнительной подсветки в случае ее циркулярной и линейной поляризации. Отрицательные значения амплитуды соответствуют изменению фазы прецессии на π. Сплошные линии на панели показывают линейную аппроксимацию. (c) Зависимость скорости затухания спиновой прецессии после выключения РЧ поля от интенсивности дополнительной подсветки. (d) Зависимость частоты спиновой прецессии после выключения РЧ поля от интенсивности дополнительной подсветки. (a)-(d) Частота РЧ поля $f_{\mathrm{rf}} = 50$ МГц, постоянное магнитное поле $B = 8.4$ мТл, длительность импульса РЧ поля 160 нс, температура образца $T = 6$ К.

вектора постоянного магнитного поля. В этом случае уравнение Блоха принимает вид:

$$\frac{d\mathbf{S}}{dt} = (\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}} + \boldsymbol{\Omega}_{\mathrm{R}}(t)) \times \mathbf{S} - \hat{\gamma}(\mathbf{S} - \mathbf{S}_{\mathrm{st}}) + \alpha P \mathbf{e}_x/2 - P\mathbf{S}, \tag{4.20}$$

где P – скорость накачки (количество ориентированных спинов в секунду), $\mathbf{e}_x$ – единичный вектор вдоль оси x, соответствующий направлению спиновой накачки. Последний член в уравнении (4.20) отражает тот факт, что оптическая накачка не только создает спиновую поляризацию вдоль оси x, но также подавляет уже существующую спиновую поляризацию. Коэффициент α отражает ограниченную эффективность оптической ориентации, то есть преобразования циркулярно поляризованного фотона в электронный спин, имеющий определенное направление. При этом мы считаем $\alpha > 0$ при подсветке поляризацией σ^-. Напомним, что спин $\mathbf{S}$ нормирован на число электронов и его максимальное значение равно $1/2$, с этим связан множитель $1/2$ в предпоследнем члене уравнения (4.20).

Можно видеть, что уравнение (4.20) приводится к исходному уравнению (4.8) заменой скорости релаксации на $\hat{\gamma} + P$ и стационарной спиновой поляризации на $\begin{pmatrix} \chi B + \alpha P T_1/2 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$. Таким образом, его решением в случае изотропной релаксации будет формула (4.16), в которой τ_{s} заменено на $\tau_{\mathrm{s}}/(1+\tau_{\mathrm{s}}P)$, а χB на $\chi B + \alpha P \tau_{\mathrm{s}}/2$. В резонансном случае $\Delta\omega_{\mathrm{L}} = 0$ амплитуда вынужденной прецессии, то есть амплитуда при $t \gg \tau_{\mathrm{s}}$ равна

$$S_{\mathrm{a}} = (\chi B + \alpha P \tau_{\mathrm{s}}/2) \frac{\Omega_{\mathrm{R}} \tau_{\mathrm{s}}}{1 + \tau_{\mathrm{s}} P + \Omega_{\mathrm{R}}^2 \tau_{\mathrm{s}}^2/(1+\tau_{\mathrm{s}}P)}. \tag{4.21}$$

Схема эксперимента с возбуждением спиновой прецессии РЧ полем и дополнительной оптической подсветкой вдоль постоянного поля показана на Рис. 4.8. Здесь РЧ катушка расположена у края образца, а дополнительная подсветка осуществляется в его торец. Размер пятна подсветки был около 0.3 мм. Поляризация подсветки контролировалась с помощью четвертьволновой пластинки и была либо циркулярной (σ^+ или σ^-) либо линейной. Подсветка осуществлялась тем же импульсным титан-сапфировым лазером, что использовался для детектирования. Только для подсветки не использовался разреживатель импульсов и период их следования составлял 13 нс, что намного меньше чем время спиновой релаксации для исследуемого образца (200-300 нс). В этом смысле, учитывая что подсветка осуществлялась вдоль магнитного поля, ее можно считать постоянной.

Динамика спиновой поляризации, возбуждаемой РЧ импульсом, при наличии дополнительной подсветки показана на Рис. 4.9(а). Можно видеть, что подсветка светом с поляриза-

цией σ^- приводит к увеличению амплитуды прецессии. При этом подсветка с поляризацией σ^+ сначала уменьшает амплитуду до нуля, а затем вновь увеличивает ее. В этом случае спиновая поляризация, создаваемая подсветкой направлена против равновесной спиновой поляризации, что реализуется при $\alpha < 0$ в уравнении (4.21). При этом амплитуда становится отрицательной, что проявляется в изменении фазы прецессии на π. Зависимость амплитуды спиновой прецессии от мощности подсветки показана на Рис. 4.9(b) для двух циркулярных поляризаций света. Под воздействием подсветки амплитуда возрастает более чем в 3 раза, а затем насыщается, чего и следует ожидать из формулы (4.21). Также показательно, что подсветка линейно поляризованным светом не приводит к увеличению амплитуды спиновой прецессии, так как линейно поляризованный свет не создает спиновую поляризацию. Насыщение, по-видимому, связано с увеличением скорости релаксации, вызванным подсветкой. Зависимость скорости затухания спиновой прецессии после выключения РЧ поля от мощности подсветки приведена на Рис. 4.9(c).

Интересно, что подсветка циркулярно поляризованным светом также приводит к сдвигу частоты спиновой прецессии, измеренной после выключения РЧ поля. Зависимость этой частоты от мощности подсветки приведена на Рис. 4.9(d). Отметим, что подсветка светом с поляризацией σ^+ увеличивает ларморовскую частоту, тогда как подсветка с поляризацией σ^- ее уменьшает. Этот эффект ожидаем. Он связан с поляризацией ядерных спинов вдоль постоянного магнитного поля, которую индуцируют электронные спины, ориентированные циркулярно поляризованным светом. Обычно ядерная поляризация наиболее ярко проявляется в системах с локализованными электронами [226].

Дефазировка и ядерная поляризация, вызванные подсветкой [Рис. 4.9(c) и (d)] являются нежелательными. Для того чтобы ослабить влияние этих эффектов в дальнейших экспериментах подсветка подавалась не непрерывно, а непосредственно перед импульсом РЧ поля [Рис. 4.10(b)]. Это осуществлялось с помощью электрооптического модулятора в луче подсветки. За счет конечной скорости усилителя напряжения, который управлял модулятором, границы импульса подсветки размыты на масштабе 200 нс. Таким образом, неравновесная спиновая поляризация вдоль поля $\mathbf{B}$ подготавливалась до воздействия на нее РЧ поля, тогда как непосредственно во время РЧ импульса подсветка отсутствовала, не создавая дополнительной дефазировки. При этом также не возникала заметная ядерная поляризация так как период действия подсветки был относительно мал. На Рис. 4.10(a) показаны спиновые динамики при различных мощностях подсветки. При этом приводится мощность усредненная за период действия подсветки (а не за все время). Можно видеть, что подсветка действительно не ускоряет затухание спиновой прецессии, а также не влияет на ее частоту. Последнее

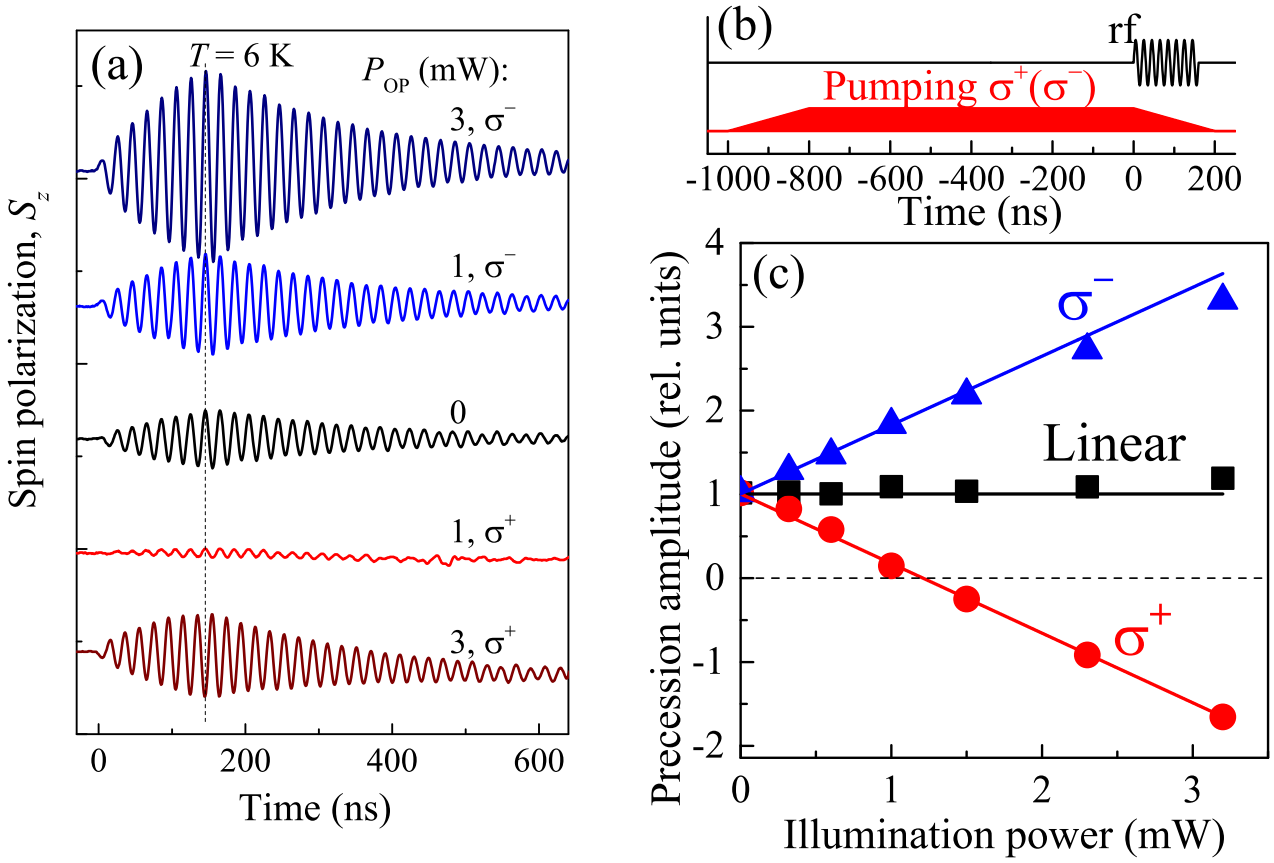


Рис. 4.10: Влияние подсветки циркулярно поляризованным светом, на динамику спиновой прецессии электронов в n-GaAs, возбуждаемую РЧ полем [A4]. Подсветка осуществляется непосредственно перед импульсом поля. (a) Динамики спиновой прецессии при различных мощностях подсветки для различных направлений ее циркулярной поляризации. Пунктирная линия отмечает момент окончания действия РЧ поля, $t = 160$ нс. (b) Временные профили РЧ поля и подсветки. (c) Зависимость амплитуды спиновой прецессии в момент выключения РЧ поля от интенсивности дополнительной подсветки в случае ее циркулярной и линейной поляризации. Отрицательные значения амплитуды соответствуют изменению ее фазы на π, что заметно по знаку сигнала в момент $t = 160$ нс на панели (a). Сплошные линии на панели показывают линейную аппроксимацию. Частота РЧ поля $f_{\mathrm{rf}} = 50$ МГц, постоянное магнитное поле $B = 8.4$ мТл, длительность импульса РЧ поля 160 нс, температура образца $T = 6$ К.

обстоятельство делает наглядным изменение фазы прецессии на π при подсветке поляризацией σ^+, что можно видеть по знаку сигнала для различных плотностей подсветки в момент окончания действия РЧ поля $t = 160$ нс [пунктирная линия на Рис. 4.10(a)]. Зависимость амплитуды прецессии от мощности подсветки в рассматриваемом диапазоне мощностей имеет линейный характер [Рис. 4.10(b)]. В этом случае динамику спиновой поляризации можно описать уравнением (4.12), где в качестве начального условия необходимо взять решение уравнения (4.20) с $\mathbf{\Omega}_\mathrm{R} = 0$: $S(0) = (\chi B + \alpha P \tau_\mathrm{s}/2)/(P\tau_\mathrm{s}+1) \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$. Таким образом, несмотря на то что в процессе воздействия РЧ поля подсветка не приводит к негативным последствиям, приготовленная начальная спиновая поляризация ограничена. При этом здесь, как и в случае непрерывной подсветки, ее влияние определяется соотношением между эффективностью спиновой ориентации и дефазировкой, вносимой подсветкой.

4.5 Заключение по данной главе

Итак, в данной главе была экспериментально продемонстрирована возможность создания и управления спиновой поляризацией с помощью быстро-меняющегося магнитного поля и ее детектирования оптическим импульсом. Также, на основе уравнения Блоха, было описано поведение спиновой системы в меняющемся магнитном поле, которое хорошо согласуется с экспериментальными данными. Был разработан радиооптический метод накачки–зондирования, позволяющий определять время продольной спиновой релаксации T_1 при резком повороте величины магнитного поля, приложенного в геометрии Фарадея, время дефазировки спинового ансамбля T_2^* при резком изменении магнитного поля, приложенного в геометрии Фарадея и время спиновой когерентности T_2 при приложении импульса осциллирующего РЧ поля. При этом уровень сигнала в данной методике определяется равновесной термической спиновой поляризацией. Показано, что при спиновой ориентации резонансным РЧ полем, уровень сигнала можно значительно увеличить за счет дополнительной оптической накачки. Это позволяет расширить область применения радиооптического метода накачки–зондирования.

Глава 5

Комбинированный резонанс при оптическом и РЧ возбуждении спиновой системы, стимулированное резонансное спиновое усиление

5.1 Введение

Известно (см. главу 1), что периодическая оптическая накачка ансамбля электронных спинов в постоянном магнитном поле приводит к резонансному спиновому усилению (РСУ) при выполнении условия $f_{\mathrm{L}} = mf_{\mathrm{o}}$, $m = 0, 1, 2...$ [99, 120, 227, 121]. Напомним, что f_{L} – это частота Лармора, а f_{o} – частота повторения оптических импульсов. Аналогично приложение РЧ поля к ансамблю электронных спинов приводит к электронному спиновому резонансу (ЭПР) [47, 48, 49, 219, 220], когда частота РЧ поля f_{rf} равна ларморовской частоте: $f_{\mathrm{rf}} = f_{\mathrm{L}}$. Напрашивается идея о наблюдении комбинированного РСУ–ЭПР резонанса, который описывается условием

$$f_{\mathrm{rf}} = f_{\mathrm{L}} = mf_{\mathrm{o}}, \tag{5.1}$$

где $m = 0, 1, 2....$

Мы начнем с рассмотрения однородной системы n-GaAs с концентрацией электронов вблизи перехода металл–изолятор, в которой большинство электронов является свободными. За счет этого происходит усреднение частот спиновой прецессии [68] и $T_2 = T_2^*$. В начале данной главы рассказано о наблюдении и исследовании основных свойств комбинированного резонанса в этой системе [А3].

Отметим, однако, что ширина как РСУ, так и ЭПР резонансов определяется неоднородным временем спиновой дефазировки спинового ансамбля T_2^*. Это же время определяет затухание спиновой прецессии в экспериментах "накачка–зондирование" [9, 10, A16]. В неоднородных системах с локализованными электронами часто выполняется условие $T_2^* \ll T_2$ так как время T_2^* определяется разбросом ларморовских частот $\delta\omega_{\mathrm{L}}$ отдельных электронов в ансамбле: $1/T_2^* = 1/T_2 + \delta\omega_{\mathrm{L}}$. Таким образом, из ширины линии как РСУ, так и ЭПР резонансов невозможно определить время спиновой когерентности T_2. При этом именно это время важно для определении механизмов спиновой релаксации и установления возможности использования данной спиновой системы в качестве квантовых битов в технологиях квантовой обработки информации. Измерение времени T_2 требует экспериментов с отдельными спинами [7, 113] и/или реализации метода спинового эха [50, A13, 22, 228]. Эти эксперименты позволяют измерить время T_2 присущее отдельным спинам. Однако это время часто ограничено флуктуациями окружения электрона такими, как эффективное поле ядерных спинов, возникающее за счет сверхтонкого взаимодействия [21]. Чтобы увеличить время T_2, пытаются "оторвать" электронную спиновую подсистему от шумного окружения, применяя различные протоколы РЧ поля, например, протокол Карра-Перселла-Мейбома-Гилла, представляющий собой последовательность импульсов РЧ поля, переворачивающих спиновое состояние [229, 230], что значительно увеличивает T_2 [231], но еще больше усложняет эксперименты [7].

В во второй части данной главы будет показано, что приложение одновременно РЧ поля и периодических лазерных импульсов в условиях комбинированного РСУ–ЭПР резонанса позволит решить обе указанные проблемы и измерить время T_2 присущее отдельному спину, оторванному от ядерного окружения. Для этого мы исследуем систему сильно локализованных электронов в ионах церия в решетке аллюмо-иттриевого граната, Ce^{3+}:YAG. Данная система обладает большой неоднородностью, так что $T_2^* \ll T_2$. Мы покажем, что в неоднородной системе комбинированный РСУ–ЭПР резонанс приводит к стимулированному резонансному спиновому усилению, когда РЧ поле стимулирует оптическое спиновое усиление. Это позволяет, сканируя частоту РЧ поля относительно частоты повторения лазерных импульсов, измерить спиновый резонанс, ширина которого определяется *однородным* временем спиновой когерентности T_2. В системе Ce^{3+}:YAG ширина стимулированного РСУ резонанса составляет несколько десятков герц, что соответствует миллисекундному времени T_2, при том что время T_2^* составляет всего несколько десятков наносекунд.

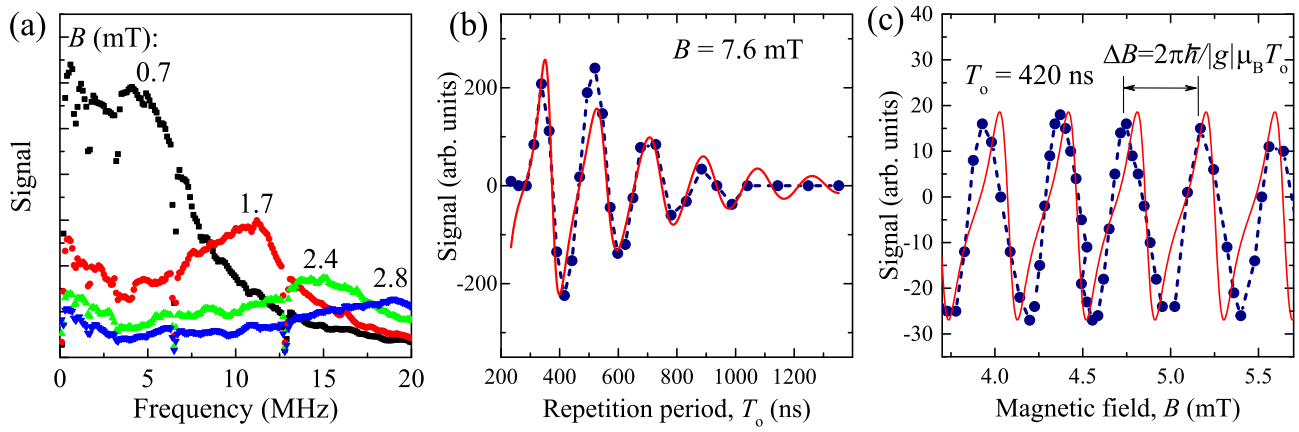


Рис. 5.1: Свидетельство влияния оптических импульсов, используемых для детектирования, на спиновую поляризацию в n-GaAs. (a) Спектры оптически-детектируемого ЭПР при различных значениях магнитного поля, приложенного в геометрии Фогта. (b) Зависимость разностного сигнала фарадеевского вращения (для различных величин поля в РЧ катушке) от периода повторения лазерных импульсов. (c) Зависимость разностного сигнала Фарадеевского вращения от магнитного поля. Температура образца $T = 6$ К.

5.2 Экспериментальное наблюдение комбинированного РСУ–ЭПР резонанса в n-GaAs

Также как и в предыдущей главе, в этой части работы исследовался объемный образец n-GaAs толщиной 350 мкм, легированная кремнием, так что концентрация свободных электронов составляла 1.4×10^{16} см$^{-3}$. Образец был помещен в гелиевый криостат. Именно в этой системе мы рассматривали явления, основанные на эффекте ЭПР в предыдущей главе. При этом детектирование осуществлялось оптическими импульсами так, что расстояние между импульсами, за счет использования селектора импульсов, было много больше времени спиновой релаксации в системе. Мы также проводили эксперименты по наблюдению ЭПР, в которых расстояние между импульсами было меньше либо порядка времени спиновой релаксации. Не вдаваясь в детали эксперимента, нами было обнаружено несколько эффектов. Во-первых спектры ЭПР, детектируемые посредством измерения фарадеевского вращения [Рис. 5.1(a)], демонстрировали не совсем обычное поведение. Величина сигнала существенно убывала с увеличением магнитного поля, что нельзя было списать лишь на увеличение импеданса РЧ катушки. Также в спектрах проявлялся пик в районе нулевых частот при всех значениях магнитного поля. Что еще более удивительно, измеряемый сигнал существенного зависел, и даже осциллировал, при изменении периода повторения лазерынх импульсов T_o [Рис. 5.1(b)], которые использовались лишь для детектирования, и поляризация которых была линейной. Более того, при достаточно большом T_o, но не много большем времени спи-

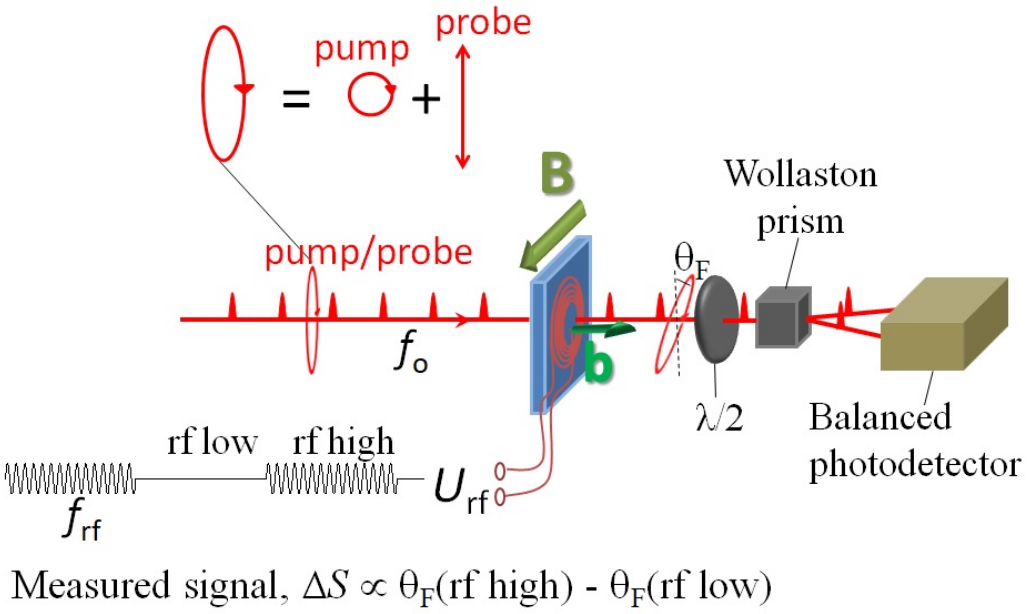


Рис. 5.2: Экспериментальная схема для наблюдения комбинированного РСУ–ЭПР резонанса. Образец возбуждается периодической последовательностью эллептически-поляризованных лазерных импульсов, которые также используются для детектирования. Также к образцу прикладывается РЧ поле и измеряется разность сигналов с и без РЧ поля.

новой релаксации, можно было видеть осцилляции сигнала в зависимости от магнитного поля [Рис. 5.1(c)]. При этом период этих осцилляций был равен $2\pi\hbar/|g|\mu_B T_o$. Эти факты указывают на то, что лазерные импульсы не только детектируют спиновую поляризацию, но и создают ее. Для возбуждения спиновой поляризации необходима, однако, циркулярная компонента в поляризации света, а исходно лазерные импульсы были линейно поляризованы. Эта компонента могла появиться за счет двулучепреломления в окошках криостата вследствие внутренних напряжений, а также двулучепреломления в кристалле GaAs, также вследствие напряжений. Более того, Рис. 5.1(c) показывает что имеет место РСУ [99, 227], которое в данном случае наблюдается лишь с одним оптическим лучом, подобно экспериментам в работах [120, 121]. Таким образом, у нас имеется возможность наблюдать оба резонанса РСУ и ЭПР в данной системе, используя лишь один луч импульсного лазера и прикладывая к системе РЧ поле. Настраивая частоты f_L и f_{rf} в резонанс с mf_o, можно наблюдать комбинированный РСУ–ЭПР резонанс.

Для наблюдения комбинированного РСУ–ЭПР резонанса использовалась схема эксперимента, изображенная на Рис. 5.2, практически такая же, как схема описанная в разделе 4.2. Однако здесь специально использовалась эллиптическая поляризация лазерного излучения так, чтобы циркулярная составляющая ориентировала спин в образце, а линейная составляющая поляризации использовалась для детектирования, измеряя ее фарадеевское

вращение. Далее, в разделе 5.6, будет более подробно представлен анализ влияния эллиптичности излучения на уровень сигнала и показано, что максимальный уровень сигнала в этих экспериментах достигается при равном вкладе линейной и циркулярной компонент. Таким образом, накачка и зондирование здесь совмещены в одном луче. В описанных здесь экспериментах частота лазерных импульсов (благодаря использованию селектора импульсов) составляла $f_{\mathrm{o}} = 4.8$ МГц, период их следования $T_{\mathrm{o}} = 209$ нс. Пониженная частота лазерных импульсов использовалась для наблюдения нескольких мод РСУ в рассматриваемом диапазоне магнитных полей. В наших экспериментах также прикладывалось синусоидальное РЧ поле с частотой f_{rf}, близкой к частоте ларморовской прецессии электронных спинов. РЧ поле было промодулировано с частотой 100 кГц, так что РЧ поле включалось с периодом 10 мкс на 5 мкс. На этой же частоте осуществлялось синхронное детектирование. Таким образом, измерялось разность сигналов фарадеевского вращения с и без РЧ поля $\theta_{\mathrm{F}}(\mathrm{rf\ on}) - \theta_{\mathrm{F}}(\mathrm{rf\ off})$. Далее на спектрах будет приводиться величина с обратным знаком так как на самом деле РЧ поле приводит к уменьшению сигнала спиновой поляризации.

Рисунок 5.3 показывает зависимости сигнала (спиновой поляризации) от частоты РЧ поля (ОДМР спектры) при различных значениях постоянного поля (частоты Лармора). При этом как частота РЧ поля f_{rf}, так и частота Лармора f_{L} изменяются вблизи десятикратной частоты повторения лазерных импульсов $10f_{\mathrm{o}}$. Когда f_{L} отдалено от $10f_{\mathrm{o}}$, форма спектра имеет дисперсионный характер с центром на частоте $10f_{\mathrm{o}}$. При приближении f_{L} к $10f_{\mathrm{o}}$ спектр принимает форму пика и его амплитуда увеличивается. Это и есть комбинированный РСУ–ЭПР резонанс.

При увеличении амплитуды РЧ поля, которая задается амплитудой РЧ напряжения U_{rf}, амплитуда комбинированного резонанса увеличивается. Интересно, что при этом спектральная линия уширяется и раздваивается [Рис. 5.4(a)]. Величина этого расщепления порядка частоты Раби $\Omega_{\mathrm{R}} = |g|\mu_{\mathrm{B}}b/2\hbar$. Зависимость спиновой поляризации ΔS_z в резонансе $f_{\mathrm{rf}} = f_{\mathrm{L}} = 10f_{\mathrm{o}}$ от амплитуды РЧ напряжения [Рис. 5.4(b)] является квадратичной при малых U_{rf}, а затем насыщается. Как будет видно из дальнейшего теоретического рассмотрения, это насыщение затем должно перейти в спад и далее должны наблюдаться осцилляции Раби на подобии тех, что наблюдались на Рис. 4.5(b). Отметим, что квадратичная зависимость амплитуды сигнала от амплитуды РЧ поля нетипична для ЭПР резонанса, где ожидается линейная зависимость [уравнение (4.17)]. Это связано с тем, что в случае стандартного ЭПР РЧ поле воздействует на равновесную спиновую поляризацию, направленную вдоль внешнего поля (оси x), которая раскручивается вокруг этого поля [Рис. 5.7(a)], что во вращающейся системе отсчета проявляется как поворот вокруг вектора $\mathbf{\Omega}_{\mathrm{R}}$ [мы считаем $\omega_{\mathrm{rf}} = \omega_{\mathrm{L}}$,

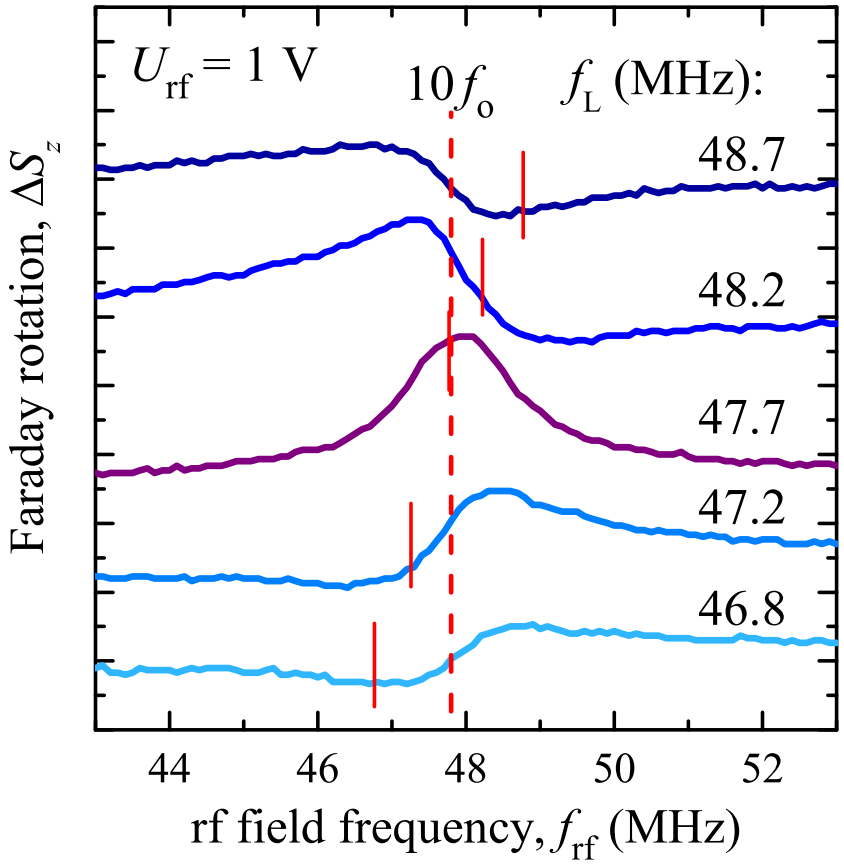


Рис. 5.3: Зависимости спиновой поляризации электронов в n-GaAs от частоты РЧ поля (ЭПР спектры) при различных значениях магнитного поля, которое меняется так, что ларморовская частота (красные сплошные вертикальные линии) находится вблизи 10-кратной частоты повторения лазерных импульсов (красная пунктирная вертикальная линия). $U_{rf} = 1$ В, $T = 6$ К [А3].

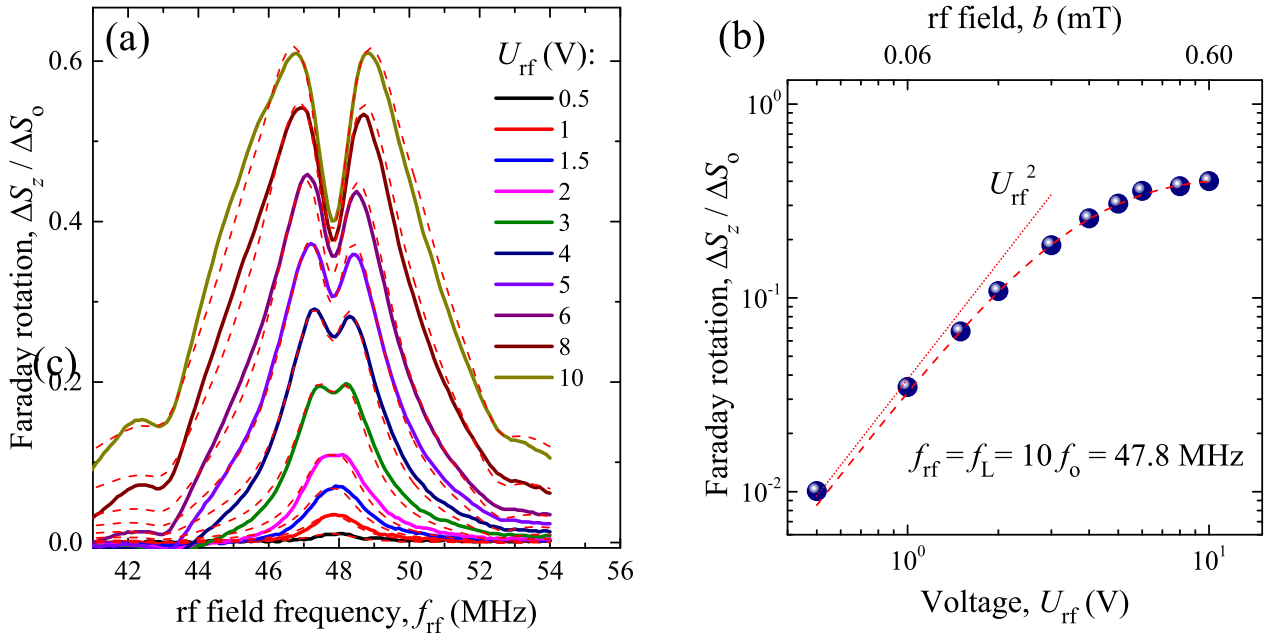


Рис. 5.4: Влияние амплитуды РЧ поля [A3]. (a) Зависимости спиновой поляризации электронов в n-GaAs от частоты РЧ поля (ЭПР спектры) при различных значениях амплитуды РЧ напряжения, которое задает амплитуду РЧ поля. $f_L = 10 f_o$. (b) Зависимость спиновой поляризации в резонансе $f_{rf} = f_L = 10 f_o$ от РЧ напряжения. Точечная линия показывает квадратичную зависимость. (a),(b) Пунктирные линии показывают теоретический расчет. $T = 6$ K.

см. Рис. 4.4(c)] на угол $\theta \sim \Omega_R \tau_s$, если мы рассматриваем случай $\Omega_R \tau_s \ll 1$. Соответственно, амплитуда осциллирующего вокруг оси x сигнала, пропорциональна $\sin(\theta) \sim \Omega_R \tau_s \propto b$. В случае, рассматриваемом в данном разделе, комбинированного РСУ–ЭПР резонанса, спиновая поляризация определяется оптической накачкой, которая направлена вдоль оси z [Рис. 5.7(b)]. В отсутствии РЧ поля, создаваемая спиновая поляризация вращается вокруг постоянного поля (оси x). РЧ поле выводит это вращение из плоскости yz, отклоняя спиновую поляризацию во вращающейся системе отсчета на угол $\theta \sim \Omega_R \tau_s$ [Рис. 5.7(c)]. Соответственно амплитуда, детектируемой вдоль оси z спиновой поляризации изменяется на величину, пропорциональную $1 - \cos\theta \approx \theta^2/2 \sim \Omega_R^2 \tau_s^2/2 \propto b^2$. Именно это изменение детектируется в эксперименте.

Далее мы исследовали как меняется спектр комбинированного резонанса при изменении мощности лазера P. Как видно из Рис. 5.5(a) при увеличении P интенсивность сигнала существенно увеличивается, однако форма спектра практически не меняется. Лишь при самых высоких мощностях наблюдается незначительное уширение. Зависимость сигнала в абсолютном резонансе $f_{rf} = f_L = 10 f_o$ от мощности P показана на Рис. 5.5(b). При не слишком больших мощностях она имеет квадратичный характер. Это ожидаемо в однолучевой схе-

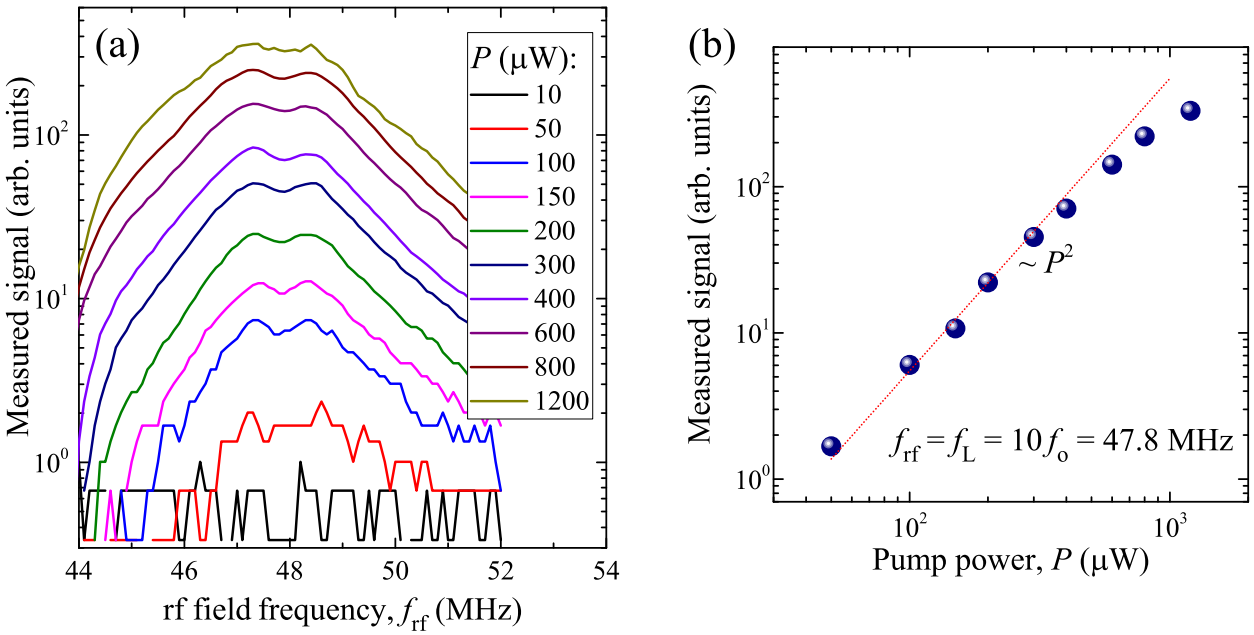


Рис. 5.5: Зависимость от мощности лазера [A3]. (a) ОДМР спектры n-GaAs при различных значениях лазерной мощности P. $f_L = 10 f_o$. (b) Зависимость измеряемого сигнала в резонансе $f_{rf} = f_L = 10 f_o$ от лазерной мощности. (a),(b) $U_{rf} = 4$ В, $T = 6$ К.

ме эксперимента. Действительно, создаваемая лазером спиновая поляризация, на которую воздействует РЧ поле, пропорциональна мощности лазерного луча P. При этом спиновая поляризация вызывает фарадеевское вращение, которое детектируется балансным детектором как разность интенсивностей лучей с ортогональными поляризациями. Таким образом, измеряемый балансным детектором сигнал пропорционален фарадеевскому вращению умноженному на интенсивность лазерного луча, который приходит на балансный детектор. Таком образом измеряемый сигнал пропорционален P^2 за счет использования того же луча как для создания спиновой поляризации, так и для ее детектирования. Более подробно данный вопрос, а также зависимость измеряемого сигнала от поляризации излучения (напомним, что она должна быть эллиптической) будет разобран в разделе 5.6.

Наиболее полная картина комбинированного РСУ–ЭПР резонанса представлена на Рис. 5.6(a). Здесь интенсивность сигнала (спиновая поляризация) показана цветом как функция частоты РЧ поля и частоты Лармора. На рисунке отчетливо видны пики, соответствующие условию комбинированного резонанса $f_{rf} = f_L = m f_o$ с $m = 8, 9$ и 10. В этих измерениях использовалось достаточно большое РЧ напряжение U_{rf}, так что при более детальном измерении [вставка на Рис. 5.6(a)] можно увидеть расщепление пиков в соответствии с Рис. 5.4(a). Интересно, что все наблюдаемые в спектрах особенности соответствуют резонансу либо частоты РЧ поля, либо частоты Лармора с $m f_o$, что также наглядно демонстрируют

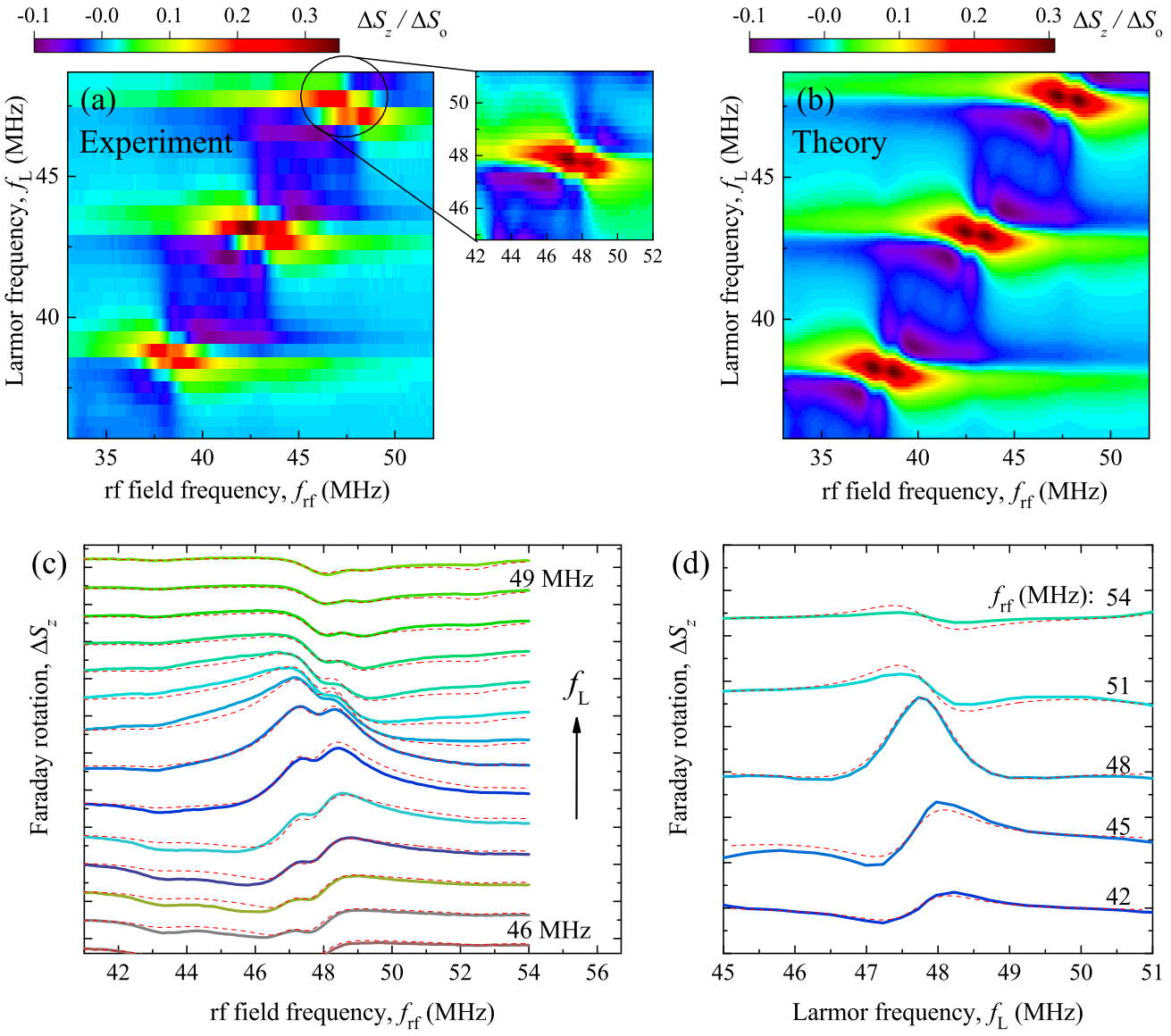


Рис. 5.6: (a) Двумерная карта, показывающая зависимость спиновой поляризации электронов в n-GaAs от частоты РЧ поля и частоты Лармора (магнитного поля). Пики на карте соответствуют резонансам $f_{\rm rf} = f_{\rm L} = mf_{\rm o}$, $m = 8, 9, 10$. Вставка показывает участок карты, измеренный с лучшим разрешением по полю. (b) Карта, соответствующая панели (a), но рассчитанная теоретически. (c) Горизонтальные сечения экспериментальной карты – зависимости спиновой поляризации от частоты РЧ поля при различных значениях ларморовской частоты. (d) Вертикальные сечения экспериментальной карты – зависимости спиновой поляризации от ларморовской частоты при различных значениях частоты РЧ поля. Пунктирные линии показывают теоретический расчет. (a),(c),(d) $U_{\rm rf} = 4$ В, $T = 6$ К [A3].

горизонтальные [Рис. 5.6(c)] и вертикальные [Рис. 5.6(d)] сечения Рис. 5.6(a). При этом для $f_{\rm rf} = f_{\rm L} \neq m f_{\rm o}$ особенностей не наблюдается. Это говорит о том, что чистый ЭПР резонанс, амплитуда которого характеризуется термически равновесной спиновой поляризацией, не заметен на фоне более сильного РСУ–ЭПР резонанса, амплитуда которого характеризуется оптически накачиваемой спиновой поляризацией.

5.3 Теория комбинированного РСУ–ЭПР резонанса в однородной системе

Теория комбинированного РСУ–ЭПР резонанса в однородной системе ($T_1 = T_2 = T_2^*$) была построена в нашей работе [А3] Д. Н. Собьяниным основываясь на уравнении Блоха и используя аппарат кватернионов. В этой диссертации мы представим теорию данного явления с помощью перехода во вращающуюся систему отсчета. Это позволит сохранить общность теоретического описания, которое используется и в других главах. Мы стартуем с уравнения Блоха, описывающего динамику спиновой поляризации в магнитном поле:

$$\frac{d\mathbf{S}}{dt} = (\boldsymbol{\omega}_{\rm L} + \boldsymbol{\Omega}_{\rm R}(t)) \times \mathbf{S} - \hat{\gamma}\mathbf{S} + \Delta\mathbf{S}_{\rm o} \sum_n \delta(t - nT_{\rm o}). \tag{5.2}$$

Оно аналогично уравнению (4.8), однако здесь мы пренебрегаем термически равновесной спиновой поляризацией, которая, как было видно выше из эксперимента, много меньше спиновой поляризации, создаваемой оптически. Именно за нее отвечает последний член в уравнении (5.2), который описывает рождение спиновой поляризации $\Delta S_{\rm o}$ короткими лазерными импульсами, приходящими с периодом $T_{\rm o}$. Также мы рассматриваем случай изотропной спиновой релаксации $\hat{\gamma} = 1/\tau_{\rm s}$, которая имеет место для исследуемого в этой главе образца объемного n-GaAs с концентрацией электронов вблизи перехода металл–изолятор.

Для начала решим уравнение (5.2) для одного лазерного импульса, пришедшего в момент времени $t = 0$, обозначив это решение как $\mathbf{S}_1(t, \varphi_{\rm rf})$, где $\varphi_{\rm rf}$ – фаза РЧ поля в момент прихода лазерного импульса, определенная в уравнении (4.9). Его легко найти, решив однородное уравнение (5.2) без свободного члена с начальным условием $S_0(0, \varphi_{\rm rf}) = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \Delta S_{\rm o} \end{pmatrix}$. Это решение можно получить из формул (4.10),(4.13),(4.15), пренебрегая членами, пропор-

циональными χB. В частности, нас интересует z компонента:

$$S_{1,z}(t,\varphi_{\rm rf}) = \Big\{ \frac{\Omega_{\rm R}^2}{\Omega^2}\cos(\varphi_{\rm rf})\cos(\omega_{\rm rf}t-\varphi_{\rm rf})[1-\cos(\Omega t)] + \cos(\omega_{\rm rf}t)\cos(\Omega t) - \frac{\Delta\omega_{\rm L}}{\Omega}\sin(\omega_{\rm rf}t)\sin(\Omega t)\Big\}\Delta S_{\rm o}\exp(-t/\tau_{\rm s}). \quad (5.3)$$

Решение же уравнения (5.2) в момент времени $t = +0$ есть сумма функций $S_{1,z}$ в моменты времени $nT_{\rm o}$, где $n = 0, 1..$ – номер лазерного импульса. При этом фаза РЧ поля в момент прихода n-го импульса равна $\varphi_{\rm rf} + nT_{\rm o}\omega_{\rm rf}$.

$$S_z = \sum_{n=0}^{\infty} S_{1,z}(nT_{\rm o}, \varphi_{\rm rf} + nT_{\rm o}\omega_{\rm rf}). \quad (5.4)$$

Поскольку лазерные импульсы не синхронизированы с РЧ полем, то мы можем произвести усреднение по $\varphi_{\rm rf}$:

$$\langle S_z\rangle = \Delta S_{\rm o}\sum_{n=0}^{\infty}\Big\{\frac{\Omega_{\rm R}^2}{2\Omega^2}\cos(\omega_{\rm rf}nT_{\rm o})[1-\cos(\Omega nT_{\rm o})] + \cos(\omega_{\rm rf}nT_{\rm o})\cos(\Omega nT_{\rm o}) - \frac{\Delta\omega_{\rm L}}{\Omega}\sin(\omega_{\rm rf}nT_{\rm o})\sin(\Omega nT_{\rm o})\Big\}\exp(-nT_{\rm o}/\tau_{\rm s}) =$$

$$= \Delta S_{\rm o}\sum_{n=0}^{\infty}\exp(-nT_{\rm o}/\tau_{\rm s})\Big\{\frac{\Omega_{\rm R}^2}{2\Omega^2}\cos(\omega_{\rm rf}nT_{\rm o}) + \frac{1}{2}\big(1-\frac{\Delta\omega_{\rm L}}{\Omega}-\frac{\Omega_{\rm R}^2}{2\Omega^2}\big)\cos[(\omega_{\rm rf}-\Omega)nT_{\rm o}] + \frac{1}{2}\big(1+\frac{\Delta\omega_{\rm L}}{\Omega}-\frac{\Omega_{\rm R}^2}{2\Omega^2}\big)\cos[(\omega_{\rm rf}+\Omega)nT_{\rm o}]\Big\}. \quad (5.5)$$

Последняя сумма состоит из трех членов вида

$$\sum_{n=0}^{\infty}\cos(\omega nT_{\rm o})\exp(-nT_{\rm o}/\tau_{\rm s}) = \Re\sum_{n=0}^{\infty}\exp(i\omega nT_{\rm o}-nT_{\rm o}/\tau_{\rm s}) = \frac{1}{2}\frac{\sinh(T_{\rm o}/\tau_{\rm s})}{\cosh(T_{\rm o}/\tau_{\rm s})-\cos(\omega T_{\rm o})}+\frac{1}{2}, \quad (5.6)$$

которые представляют собой стандартное выражение для суммы спиновых поляризаций, создаваемых периодическими лазерными импульсами при резонансном спиновом усилении [227] и на 1 отличается от выражения (1.7) за счет учета импульса в момент $t = 0$. Произведя

суммирование, мы приходим к выражению

$$\langle S_z\rangle = \frac{\Delta S_\mathrm{o}}{8}\sinh(T_\mathrm{o}/\tau_\mathrm{s})\Bigg(\frac{2\Omega_\mathrm{R}^2/\Omega^2}{\cosh(T_\mathrm{o}/\tau_\mathrm{s})-\cos(\omega_\mathrm{rf}T_\mathrm{o})} + \frac{(1-\Delta\omega_\mathrm{L}/\Omega)^2}{\cosh(T_\mathrm{o}/\tau_\mathrm{s})-\cos[(\omega_\mathrm{rf}-\Omega)T_\mathrm{o}]} + \frac{(1+\Delta\omega_\mathrm{L}/\Omega)^2}{\cosh(T_\mathrm{o}/\tau_\mathrm{s})-\cos[(\omega_\mathrm{rf}+\Omega)T_\mathrm{o}]}+4\Bigg). \quad (5.7)$$

В эксперименте, благодаря синхронному детектированию, измеряется разность сигнала $\Delta S_z = \langle S_z\rangle|_{\Omega_\mathrm{R}=0} - \langle S_z\rangle$ без РЧ поля (при $\Omega_\mathrm{R}=0$) и с РЧ полем. Подставив $\Omega_\mathrm{R}=0$ в предыдущее выражение, можно видеть, что без РЧ поля спиновая поляризация определятся формулой (5.6) с $\omega=\omega_\mathrm{L}$. Таким образом, мы приходим к финальному результату:

$$\Delta S_z = \frac{\Delta S_\mathrm{o}}{8}\sinh(T_\mathrm{o}/\tau_\mathrm{s})\Bigg(\frac{4}{\cosh(T_\mathrm{o}/\tau_\mathrm{s})-\cos(\omega_\mathrm{L}T_\mathrm{o})} - \frac{2\Omega_\mathrm{R}^2/\Omega^2}{\cosh(T_\mathrm{o}/\tau_\mathrm{s})-\cos(\omega_\mathrm{rf}T_\mathrm{o})} - \frac{\big(1-\Delta\omega_\mathrm{L}/\Omega\big)^2}{\cosh(T_\mathrm{o}/\tau_\mathrm{s})-\cos[(\omega_\mathrm{rf}-\Omega)T_\mathrm{o}]} - \frac{\big(1+\Delta\omega_\mathrm{L}/\Omega\big)^2}{\cosh(T_\mathrm{o}/\tau_\mathrm{s})-\cos[(\omega_\mathrm{rf}+\Omega)T_\mathrm{o}]}\Bigg). \quad (5.8)$$

Напомним, что $\Delta\omega_\mathrm{L} = \omega_\mathrm{L}-\omega_\mathrm{rf}$, $\Omega = \sqrt{\Omega_\mathrm{R}^2+\Delta\omega_\mathrm{L}^2}$. Это выражение хорошо воспроизводит все экспериментальные данные, представленные в предыдущем разделе. Результаты расчета показаны на Рис. 5.4(a),5.6(c),(d) красными пунктирными линиями. Также рассчитанная двумерная карта зависимости спиновой поляризации от f_rf и f_L показана на Рис. 5.6(b). При расчете использовались значения $\tau_\mathrm{s}=200$ нс, $T_\mathrm{o}=209$ нс. Из подгонки формулы (5.8) к экспериментальным данным были определены коэффициент пропорциональности между фарадеевским вращением и спиновой поляризацией ΔS_z измеряемой в единицах ΔS_o, а также коэффициент между РЧ напряжением, подаваемым на катушку и Ω_R или амплитудой РЧ поля b. При этом в расчетах использовались одни и те же коэффициенты для описания различных экспериментальных данных. Знание этих коэффициентов позволило привести спиновую поляризацию ΔS_z в единицах ΔS_o на Рис. 5.4(a),5.6(a), а также привести значения b на верхней шкале Рис. 5.4(b).

Таким образом, в условиях РСУ, РЧ поле приводит к подавлению спиновой поляризации, препятствует выполнению условий РСУ. Этому отвечает $\Delta S_z > 0$. Действительно, РСУ наиболее эффективно когда спиновая поляризация, созданная предыдущим лазерным импульсом усиливает спиновую поляризацию, созданную следующим за ним импульсом [Рис. 5.7(b)]. Под воздействием РЧ поля спиновая поляризация созданная предыдущим импульсом выходит из плоскости своего вращения yz [Рис. 5.7(c)], что уменьшает эффект

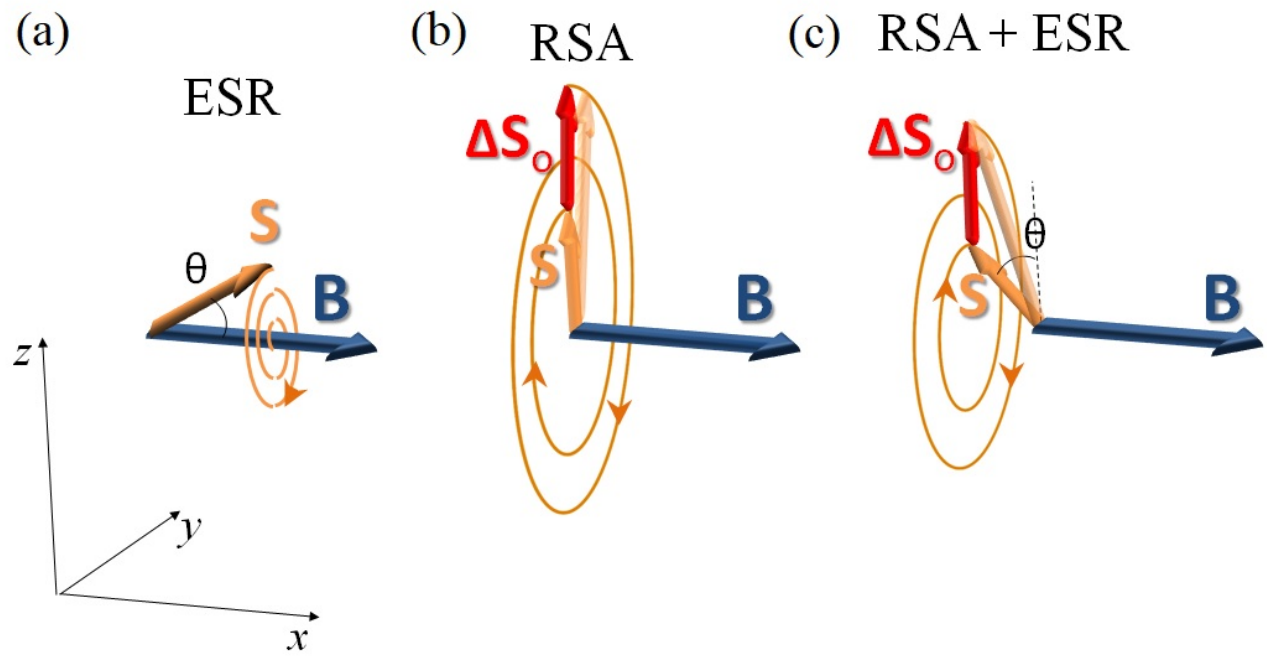


Рис. 5.7: (a) Схематическое изображение спиновой прецессии при ЭПР. (b) Схематическое изображение резонансного спинового усиления при оптической накачке. Спиновая поляризация прецессирует вокруг магнитного поля и при выполнении условия $f_{\mathrm{L}} = mf_{\mathrm{o}}$ усиливается следующим лазерным импульсом, добавляющим спиновую поляризацию ΔS_{o}. (c) РЧ поле выводит спиновую прецессию из плоскости yz, уменьшая эффективность резонансного спинового усиления [А3].

усиления. Это проявляется наиболее эффективно в условиях ЭПР. Интересно, вне условия точного выполнения условия РСУ $f_{\mathrm{L}} = mf_{\mathrm{o}}$, РЧ поле может также подстраивать спиновую прецессию, вводя ее в условие резонанса. Это отвечает отрицательному сигналу ΔS_z на Рис. 5.6(a),(b). Интересно, что в условиях эксперимента, соответствующих Рис. 5.6, то есть $U_{\mathrm{rf}} = 4$ В, максимальное подавление сигнала РСУ составляло $\sim 0.3S_{\mathrm{o}}$ (темно-красные области), тогда как его увеличение, при исходном отсутствии резонанса, составляло $\sim 0.1S_{\mathrm{o}}$.

Интересно проанализировать формулу (5.8) при условии полного резонанса $f_{\mathrm{rf}} = f_{\mathrm{rf}} = mf_{\mathrm{o}}$:

$$\Delta S_z = \frac{\Delta S_{\mathrm{o}}}{4} \sinh(T_{\mathrm{o}}/\tau_{\mathrm{s}}) \left(\frac{1}{\cosh(T_{\mathrm{o}}/\tau_{\mathrm{s}}) - 1} - \frac{1}{\cosh(T_{\mathrm{o}}/\tau_{\mathrm{s}}) - \cos(\Omega_{\mathrm{R}} T_{\mathrm{o}})} \right). \tag{5.9}$$

Из этой формулы видно, что при малых Ω_{R} $\Delta S_z \propto \Omega_{\mathrm{R}}^2$. При этом зависимость ΔS_z от Ω_{R}, начальный участок которой показан на Рис. 5.4(b), имеет периодический характер с периодом $2\pi/T_{\mathrm{o}}$. Таким образом, при некоторых значениях Ω_{R} резонансное спиновое усиление восстанавливается.

5.4 Комбинированный РСУ–ЭПР резонанс в неоднородной системе: стимулированное РСУ

В предыдущем разделе мы видели, что РЧ поле, действующее на спиновую поляризацию между последовательными лазерными импульсами, в основном ослабляет эффект РСУ при наличии резонанса между частотой следования импульсов и ларморовской частотой. Однако в отсутствии резонанса, РЧ поле может увеличивать спиновую поляризацию, подталкивая систему к РСУ. Эффективность этого зависит от амплитуды РЧ поля и времени его действия между последовательными лазерными импульсами. И здесь возникает идея: а что если подстроить интенсивность резонансного РЧ поля так, чтобы между двумя последовательными лазерными импульсами оно полностью обращало спиновую поляризацию. То есть угол, на который РЧ поле бы отклоняло спиновую поляризацию во вращающейся системе отсчета за период следования лазерных импульсов, равнялся бы π. Тогда между лазерными импульсами возникал бы эффект спинового эха (Рис. 5.8), и даже затухающая между лазерными импульсами за счет короткого времени T_2^* спиновая поляризация ансамбля возрождалась бы к приходу следующего лазерного импульса. Таким образом, мы бы наблюдали резонансное усиление спинового эха, что позволило бы определить время T_2.

Более детальное рассмотрение показывает, что искомый эффект спинового усиления, который определяется временем T_2 даже не требует условия π-импульса РЧ поля между

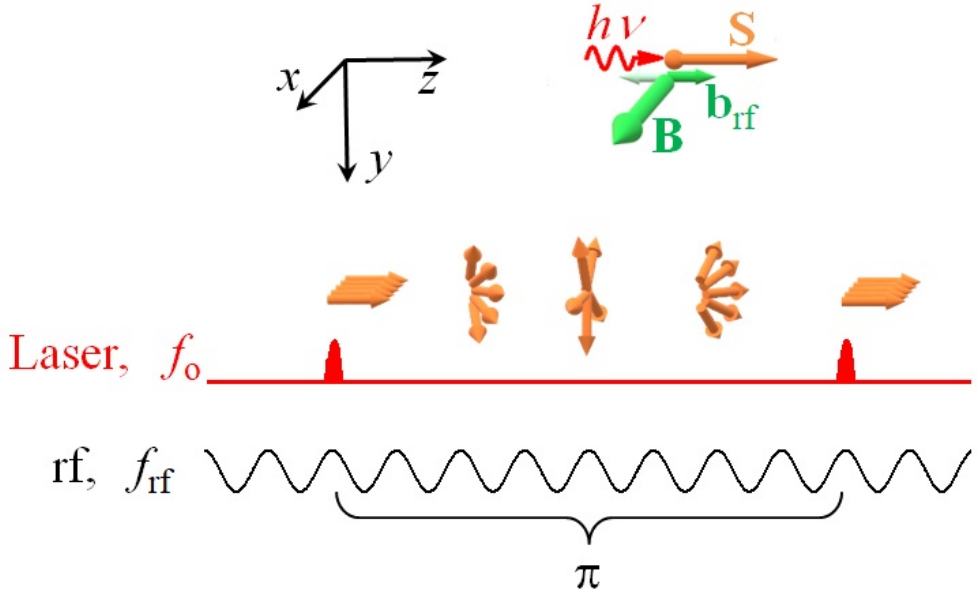


Рис. 5.8: Резонансное усиление спинового эха. Периодические лазерные импульсы следуют с периодом кратным периоду ларморовской прецессии, за счет этого происходит резонансное спиновое усиление. Однако ширина резонанса при этом определяется неоднородным временем фазовой дефазировки. Если приложить РЧ поле так, что между лазерными импульсами будет укладываться π-импульс, то между лазерными импульсами будет возникать эффект спинового эха и спиновая поляризация будет фокусироваться к моменту прихода следующего импульса. При этом ширина резонанса будет определяться временем спиновой когерентности T_2.

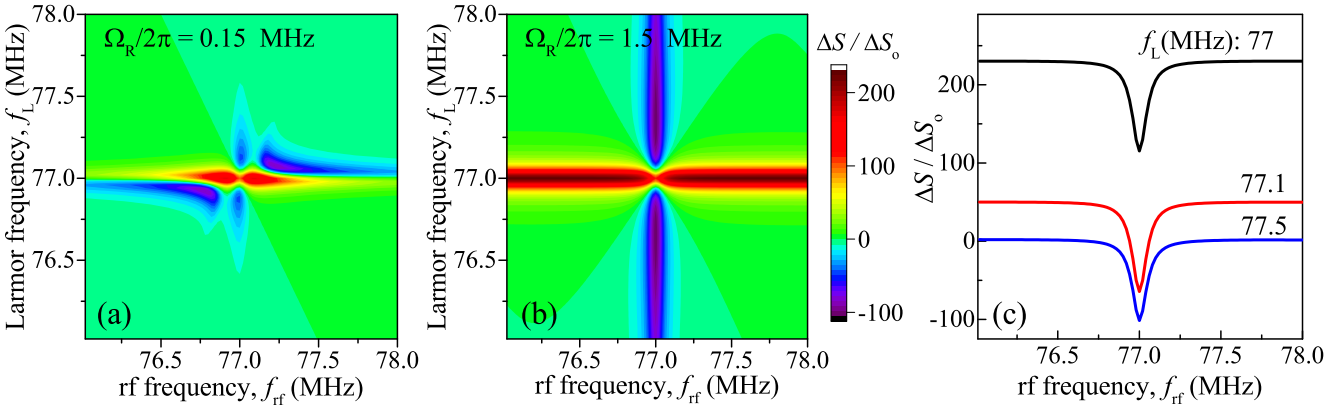


Рис. 5.9: (a),(b) Рассчитанные карты, показывающие зависимость спиновой поляризации (цветовая шкала) от частоты РЧ поля и ларморовской частоты. Панели (a) и (b) отличаются величиной расщепления Раби. (c) Спектры, показывающие зависимости спиновой поляризации от частоты РЧ поля при различных значениях ларморовской частоты. Расщепление Раби $\Omega_R/2\pi = 1.5$ МГц. (a)-(c) Расчет произведен для $\tau_s = 3$ μs и $f_o = 77$ МГц.

последовательными лазерными импульсами. В действительности амплитуда РЧ поля может быть значительно меньше. Для начала обратимся к формуле (5.8), описывающей комбинированный РСУ–ЭПР резонанс для однородной системы. Вычисленная карта спиновой поляризации в зависимости от f_{rf} и f_{L} при маленькой амплитуде РЧ поля, соответствующей частоте Раби $\Omega_{\mathrm{R}}/2\pi = 0.15$ МГц (при том, что $f_{\mathrm{o}} = 77$ МГц), показана на Рис. 5.9(a). Она похожа на карту для экспериментальной ситуации, рассмотренной ранее в этой главе. При увеличении $\Omega_{\mathrm{R}}/2\pi$ до 1.5 МГц происходит существенное преобразование карты. В частности, наблюдается провал спиновой поляризации при $f_{\mathrm{rf}} = f_{\mathrm{o}}$, положение и ширина которого не зависит от ларморовской частоты [Рис. 5.9(c)]. При этом ширина провала определяется временем спиновой релаксации. Это означает, что если у нас есть неоднородная система с разбросом ларморовских частот, то зависимость спиновой поляризации от f_{rf} будет определяться усреднением соответствующих зависимостей для различных f_{L}, примеры которых приведены на Рис. 5.9(c). Даже после усреднения соответствующая зависимость будет содержать провал при $f_{\mathrm{rf}} = f_{\mathrm{o}}$, ширина которого будет определяться однородным временем спиновой релаксации присущим единичному спину. При этом частота Раби $\Omega_{\mathrm{R}}/2\pi = 1.5$ МГц все еще много меньше частоты f_{o}; напомним, что π-импульс соответствует $\Omega_{\mathrm{R}}/f_{\mathrm{o}} = \pi$. Также напомним, что в предыдущих разделах ΔS_z определялось как разность спиновой поляризации в отсутствии и присутствии РЧ поля. Таким образом, провал в зависимости ΔS_z от f_{rf} соответствует резонансному усилению спиновой поляризации РЧ полем. Данный эффект аналогичен выжиганию провалов в экспериментах ЭПР при приложении двух мод РЧ поля и сканировании частоты одной моды относительной другой [232, 233].

Для качественного понимания данного эффекта рассмотрим Рис. 5.10. На Рис. 5.10(a) показано распределение частот спиновой прецессии спинового ансамбля в магнитном поле. При этом красными тонкими линиями показаны спектры, соответствующие индивидуальным спинам, ширина которых определяется временем спиновой когерентности T_2, тогда как ширина всего распределения определяется неоднородным временем T_2^*. Приложение РЧ поля с частотой f_{rf} воздействует на спины с собственными частотами близкими к f_{rf} (в пределах Ω_{R}), “навязывая” им свою частоту, создавая дополнительный узкий пик в распределении с максимумом на частоте f_{rf} и шириной порядка $1/T_2$ [Рис. 5.10(b)] [140]. Однако при сканировании частоты РЧ поля и измерении спектра ЭПР измеряется сигнал в максимуме пика в зависимости от f_{rf}, то есть контур, показанный на Рис. 5.10(b) пунктирной кривой, ширина которого определяется временем T_2^*. Таким образом, из спектра ЭПР не удается определить время T_2.

При приложении к спиновой системе периодических лазерных импульсов, частота ко-

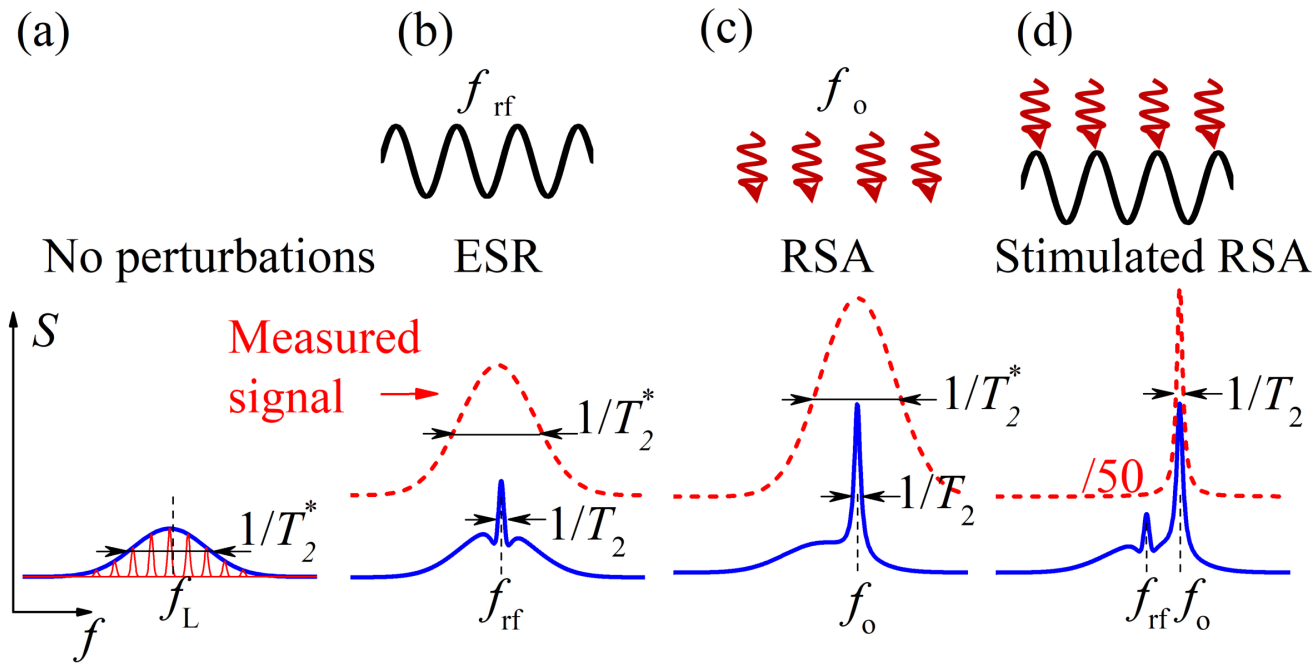


Рис. 5.10: Схематическое изображения эффекта стимулированного РСУ [A2]. Сплошными линиями показаны распределения частот спиновой поляризации в магнитном поле. Пунктирные линии показывают измеряемые профили сигналов при сканировании частоты РЧ поля f_{rf} или магнитного поля, что приводит к спектрам ЭПР (b) РСУ (c) или стимулированного РСУ (d). Амплитуда невозмущенного распределения спиновой поляризации поляризации и амплитуда сигнала ЭПР определяется отношением зеемановской и тепловой энергий, тогда как амплитуда резонансов в спектрах РСУ и стимулированного РСУ определяются оптической накачкой и могут быть намного больше.

торых f_o, с точностью до целого множителя m (далее в рассуждениях мы полагаем $m = 1$), попадает в распределение частот, происходит РСУ для спинов, частота которых близка к f_o (в пределах $1/T_2$). В спектре возникает пик, ширина которого определяется временем T_2, а амплитуда пропорциональна спиновой поляризации, возбуждаемой одним лазерным импульсом и времени T_2 [Рис. 5.10(c)]. Однако при измерении спектра РСУ сканируется магнитное поле, то есть все распределение частот прецессии проходит через частоту f_o, и измеряется сигнал в максимуме узкого пика в зависимости от магнитного поля. В результате получается профиль, показанный пунктирной линией на Рис. 5.10(c), ширина которого определяется временем T_2^*, делая невозможным определение T_2.

При приложении же к системе одновременно РЧ поля и периодических лазерных импульсов [Рис. 5.10(d)] в спектре возникает два уже упомянутых пика, ширины которых определяются временем T_2. При сканировании частоты РЧ поля относительно частоты следования лазерных импульсов один узкий пик "проходит" через другой и результирующий профиль [пунктирная кривая на Рис. 5.10(d)] имеет ширину порядка $1/T_2$, позволяя измерить время спиновой когерентности T_2. В резонансе $f_{rf} = f_o \approx f_L$ РЧ поле "подкачивает" спины из широкого ансамбля, заставляя их прецессировать на частоте $f_{rf} = f_o$, стимулируя, таким образом, резонансное оптическое спиновое усиление. Таким образом, мы будем называть данный эффект стимулированным резонансным спиновым усилением. Данное рассмотрение носит скорее качественный характер. Ниже будет приведена модель стимулированного РСУ, подтверждающая данную картину.

Итак, мы приходим к технически простому методу определения времени T_2. Для этого на образец нужно подать РЧ поле и периодические лазерные импульсы с частотами близкими к средней частоте ларморовской прецессии неоднородно уширенного спинового ансамбля и измерять амплитуду спиновой прецессии, сканируя частоту РЧ поля относительно частоты повторения лазерных импульсов, вернее mf_o, $m = 0, 1, 2....$ Для наблюдения эффекта стимулированного РСУ подойдет система с неоднородно уширенным спиновым резонансом, для которой выполняется условие $T_2^* \ll T_2$, а это практически любая система с сильно локализованными электронами. Мы выбрали хорошо известную систему, состоящую из редкоземельных ионов церия Ce^{3+} в решетке алюмо-иттриевого граната YAG. Прежде чем перейти непосредственно к эффекту стимулированного РСУ, в следующем разделе мы обсудим энергетическую структуру Ce^{3+}:YAG, механизм оптической ориентации и основные спиновые свойства данной системы, измеренные с помощью метода накачки–зондирования.

5.5 Спиновая динамика электронов в Ce^{3+}:YAG

В этом разделе мы сделаем отвлечение от основной темы данной главы и рассмотрим основные спиновые свойства ионов Ce^{3+} в решетке YAG. Именно эта система выбрана для демонстрации эффекта стимулированного резонансного спинового усиления. Читатели, не желающие заострять внимание на свойствах данной системы, могут пропустить этот раздел без ущерба для понимания эффекта стимулированного РСУ.

Трижды ионизированные ионы церия занимают в решетке YAG -сайты (c sites) с локальной симметрией D_2 [234, 235]. Каждый ион имеет неспаренный электрон на 4f уровне, который может быть переброшен оптическим возбуждением на уровень 5d (Рис. 5.11). Уровни 4f и 5d расщеплены на подуровни за счет спин-орбитального взаимодействия и поля решетки. Соответственно, электрон занимает нижний подуровень. Сразу отметим, что на 4f уровне g фактор электрона сильно анизотропен [236], тогда как на уровне 5d он практически изотропен и равен $g \approx 2$ [240]. Поглощение и испускание света между упомянутыми уровнями происходит с участием фононов. В результате полосы поглощения и фотолюминесценции достаточно широкие и лежат выше и ниже, соответственно, относительно энергии бесфононной линии 2.54 эВ [7, 237].

Схема оптической ориентации спинов электронов в ионах церия описана в работах [7, 54] и схематически показана на Рис. 5.11. В равновесии спиновая поляризация в ансамбле ионов близка к 0, мы пренебрегаем малой равновесной поляризацией. Таким образом, число ионов со спинами преимущественно направленными вверх (ion1 на Рис. 5.11) и вниз (ion2 на Рис. 5.11) примерно равны. Если на систему падает свет с циркулярной поляризацией σ^-, он преимущественно возбуждает электроны со спином вверх на уровень 5d, переворачивая спин. При этом переход электрона обратно на уровень 4f происходит практически равновероятно в оба спиновых состояния [7, 54]. Таким образом, спин электрона, возбужденного светом, и релаксировавшего обратно близок к нулю и средний спин системы направлен вниз. Интересно, что спиновая ориентация происходит как раз за счет электронов не затронутых оптическим возбуждением. Этот сценарий оптической ориентации имеет место на временах больших времени релаксации электрона на уровень 4f, которое составляет 70 нс [238]. Сразу же после возбуждения ансамбль электронов также, очевидно, приобретает спиновую поляризацию, причем как на 4f (за счет ионов с нетронутыми электронами), так и на 5d (за счет ионов с возбужденными электронами) уровнях. Именно эта поляризация проявляется в экспериментах “накачка–зондирование” на коротких временах.

На Рис. 5.12(a) показана динамика фарадеевского вращения, измеренная обычным ме-

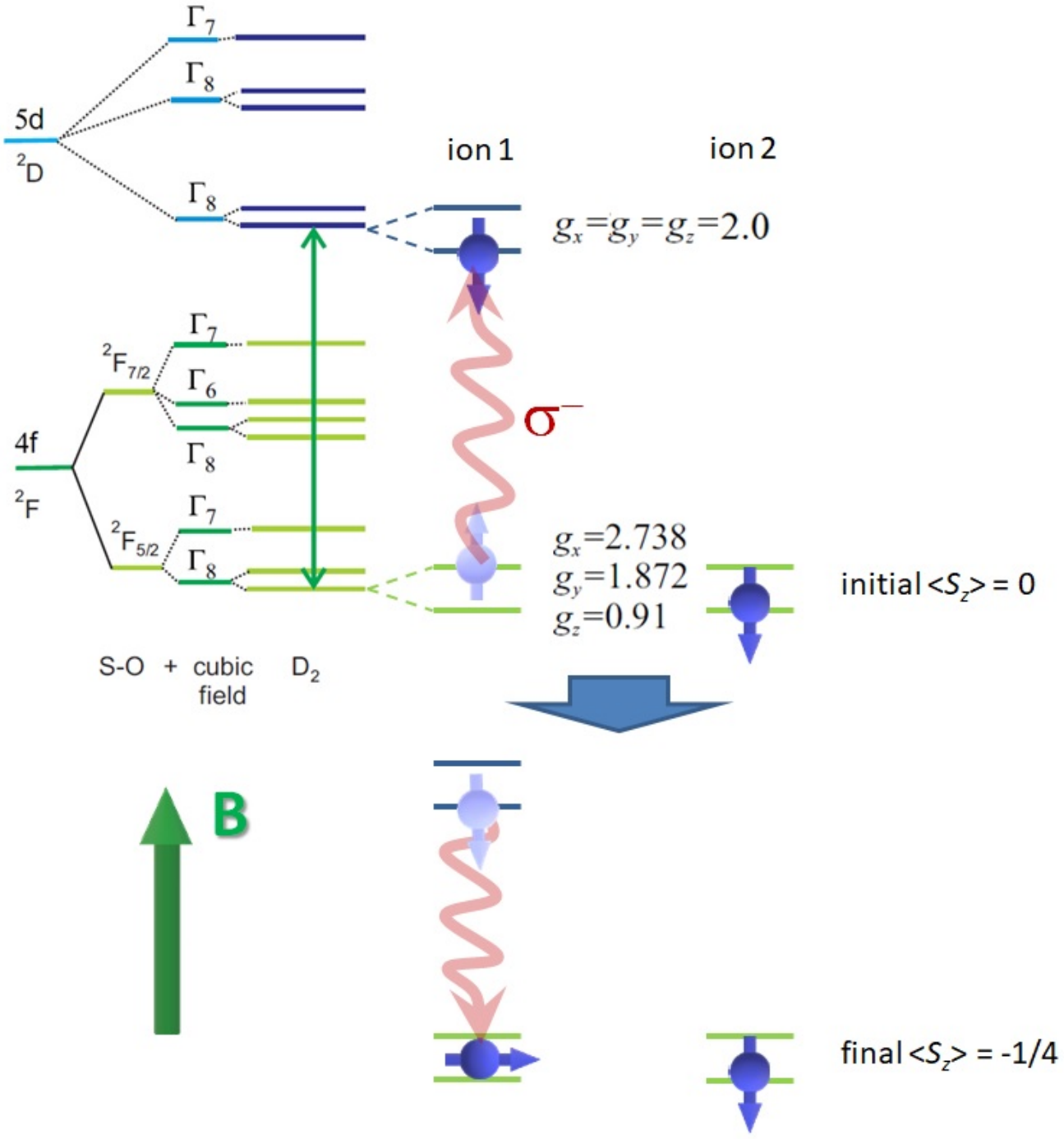


Рис. 5.11: Диаграмма уровней энергии Ce^{3+} в решетке YAG и схема оптической ориентации электронов.

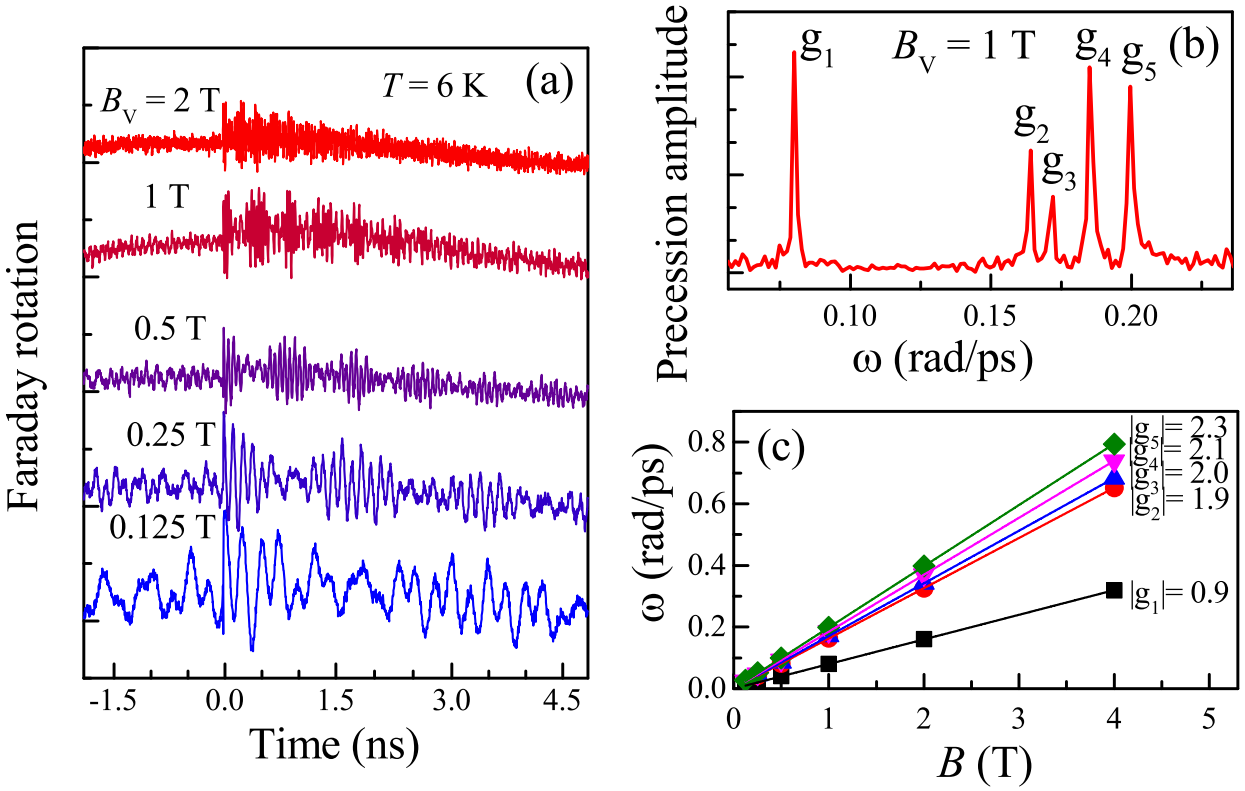


Рис. 5.12: (a) Динамика фарадеевского вращения в ионах Ce^{3+} в решетке YAG при различных значениях магнитного поля, приложенного в геометрии Фогта. (b) Спектр амплитуд спиновой прецессии, полученный преобразованием Фурье из динамики фарадеевского вращения при $B = 1$ Тл. (c) Магнитополевые зависимости частот ларморовской прецессии, соответствующих пикам на панели (b). Наклон линейных зависимостей позволяет определить g факторы соответствующих спиновых резонансов. (a)-(c) Температура $T = 6$ K, образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.1 ат. % [A13].

тодом накачки–зондирования при различных значениях магнитного поля, приложенного в геометрии Фогта. Во всех экспериментах данного раздела длина волны лучей накачки и зондирования составляла 453 нм и как и в других разделах данной диссертации все опыты проводились при гелиевых температурах. На первый взгляд, динамика фарадеевского вращения нерегулярна и похожа на шум. Однако преобразование Фурье данной динамики показывает наличие нескольких ярко-выраженных мод спиновой прецессии [Рис. 5.12(b)]. По мере увеличения магнитного поля, динамика ускоряется и моды сдвигаются в большие частоты. Зависимости соответствующих частот от магнитного поля приведены на Рис. 5.12(c), из которого видно, что они линейны, позволяя определить пять g факторов.

На первый взгляд, наличие нескольких (>2) g факторов в данной системе удивительно, так как она содержит один оптически-активный электрон, который может находиться на нижнем подуровне уровня 4f или 5d. Однако нужно вспомнить, что g тензор данного электрона в 4f состоянии имеет сильную анизотропию. При этом ион Ce^{3+} может встраиваться в 6 магнитно не эквивалентных -сайтов решетки YAG, которые будет соответствовать различным ориентациям g тензора. Соответственно, при фиксированной ориентации магнитного поля $\mathbf{B}$ мы наблюдаем различные значения g факторов для различных ориентаций g тензора, которые имеют место для различных ионов. Если бы мы имели возможность регистрировать сигнал только от одного иона, мы бы наблюдали один g фактор для электрона в 4f состоянии и другой g фактор для электрона в 5d состоянии. Тот факт, что мы наблюдаем меньше семи g факторов (6+1) связан с тем, что некоторые частоты близки и не разрешаются в спектре.

Итак, если вышеприведенное объяснение верно, мы должны наблюдать сильную анизотропию g тензора при изменении направления магнитного поля. И мы ее действительно наблюдаем (Рис. 5.13). Как при вращении магнитного поля в плоскости образца, изменении угла φ [Рис. 5.13(a)], так и при отклонении его от нормали, изменении угла θ [Рис. 5.13(b)], мы наблюдаем существенное изменение частот спиновой прецессии, соответствующее изменению g фактора.

Опишем измеренные зависимости частот спиновой прецессии (g фактора) от направления магнитного поля. Итак, имеются 6 магнитно неэквивалентных -сайтов в ячейке YAG с точечной симметрией D_2, в которые встраиваются ионы Ce^{3+}. Направления главных осей g тензора для этих сайтов приведены в Таблице 5.1. В системах координат с осями, приведенными в таблице g тензор имеет диагональную форму $\hat{g}_{\mathrm{d}} = \begin{pmatrix} g_x & 0 & 0 \\ 0 & g_y & 0 \\ 0 & 0 & g_z \end{pmatrix}$, $g_x = 2.738$, $g_y = 1.872$, $g_z = 0.91$ [236]. Для фиксированного направления магнитного поля $\mathbf{B}$ шесть

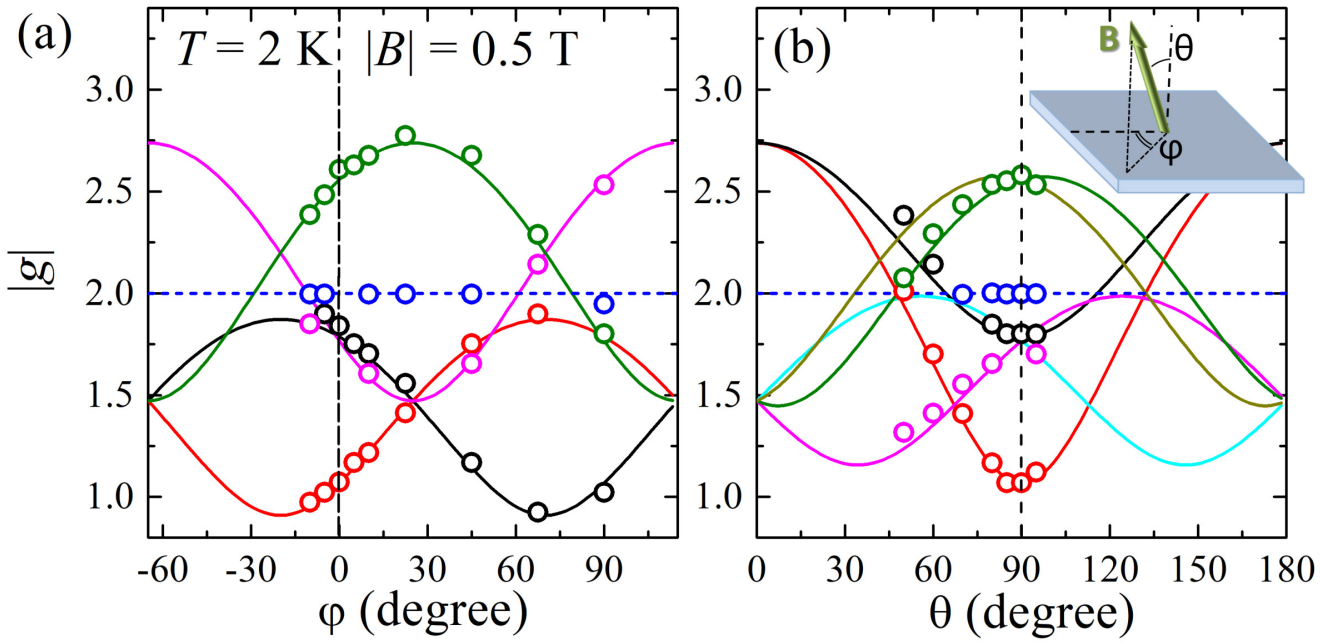


Рис. 5.13: Анизотропия g фактора. Зависимость g факторов, полученных из динамики фарадеевского вращения от угла φ магнитного поля, лежащего в плоскости образца, относительно его стороны (a) и от угла θ магнитного поля, лежащего в плоскости, содержащей нормаль и сторону образца, относительно нормали (b). Во вставке на панели (b) показано как определены углы φ и θ. Магнитное поле $B = 0.5$ Тл, температура $T = 2$ K, образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. % [A13].

частот спиновой прецессии могут быть вычислены следующим образом:

$$\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L},i} = \frac{\mu_{\mathrm{B}}}{\hbar} \hat{A}_i \hat{g}_{\mathrm{d}} \hat{A}_i^{-1} \boldsymbol{B}, \tag{5.10}$$

где $\hat{A}_i$ – матрицы перехода от систем координат с осями, приведенными в Таблице 5.1 к системе координат решетки с осями ([1,0,0], [0,1,0], [0,0,1]):

$$\hat{A}_1 = \begin{pmatrix} 0 & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \\ 0 & -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \\ 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \hat{A}_2 = \begin{pmatrix} 0 & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \\ 0 & 1/\sqrt{2} & -1/\sqrt{2} \\ -1 & 0 & 0 \end{pmatrix},$$
$$\hat{A}_3 = \begin{pmatrix} 0 & -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \end{pmatrix}, \hat{A}_4 = \begin{pmatrix} 0 & 1/\sqrt{2} & -1/\sqrt{2} \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \end{pmatrix},$$
$$\hat{A}_5 = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \\ 0 & -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \end{pmatrix}, \hat{A}_6 = \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \\ 0 & 1/\sqrt{2} & -1/\sqrt{2} \end{pmatrix}. \tag{5.11}$$

Site	x	y	z
1	$[0,0,1]$	$[1,\bar{1},0]$	$[1,1,0]$
2	$[0,0,\bar{1}]$	$[1,1,0]$	$[1,\bar{1},0]$
3	$[0,1,0]$	$[\bar{1},0,1]$	$[1,0,1]$
4	$[0,\bar{1},0]$	$[1,0,1]$	$[\bar{1},0,1]$
5	$[1,0,0]$	$[0,1,\bar{1}]$	$[0,1,1]$
6	$[\bar{1},0,0]$	$[0,1,1]$	$[0,1,\bar{1}]$

Таблица 5.1: Направления главных осей g тензора для -сайтов в решетке YAG.

Угол φ на Рис. 5.13(a) изменяется в плоскости образца и отсчитывается от его стороны [вставка на Рис. 5.13(b)], которая задается вектором $\begin{pmatrix}\cos\varphi_0\\ \sin\varphi_0\\ 0\end{pmatrix}$ в решеточной системе координат, где $\varphi_0 = -24°$. При этом нормаль к образцу задается вектором $\begin{pmatrix}0\\0\\1\end{pmatrix}$ в решеточной системе координат. Таким образом, вектор магнитного поля в решеточной системе координат имеет вид $\mathbf{B} = B\begin{pmatrix}\cos(\varphi+\varphi_0)\\ \sin(\varphi+\varphi_0)\\ 0\end{pmatrix}$. Шесть частот спиновой прецессии даются модулем частоты $\boldsymbol{\omega}_\mathrm{L}$ из уравнения (5.10), в котором используется приведенный выше вектор магнитного поля.

Угол θ на Рис. 5.13(b) изменяется в плоскости, содержащей векторы $\begin{pmatrix}0\\0\\1\end{pmatrix}$ (нормаль к образцу) и $\begin{pmatrix}\cos\varphi_0\\ \sin\varphi_0\\ 0\end{pmatrix}$ (одна из сторон образца). Шесть частот спиновой прецессии даются модулем частоты $\boldsymbol{\omega}_\mathrm{L}$ из уравнения (5.10), где в системе координат решетки вектор магнитного поля задан как $\mathbf{B} = B\begin{pmatrix}\cos\varphi_0\sin\theta\\ \sin\varphi_0\sin\theta\\ \cos\theta\end{pmatrix}$.

Рассчитанные таким образом зависимости g фактора от углов φ и θ приведены сплошными линиями на Рис. 5.13. Интересно, что не все экспериментальные точки согласуются с расчетом. Синие символы соответствуют g фактору $g = 2$, не зависящему от углов и не описываются в рамках g тензора, соответствующего 4f состоянию. Эти данные соответствуют электрону на 5d уровне, где его g фактор близок к g фактору свободного электрона и практически изотропен [240]. Отметим, что электрон в 5d состоянии проявляется на мас-

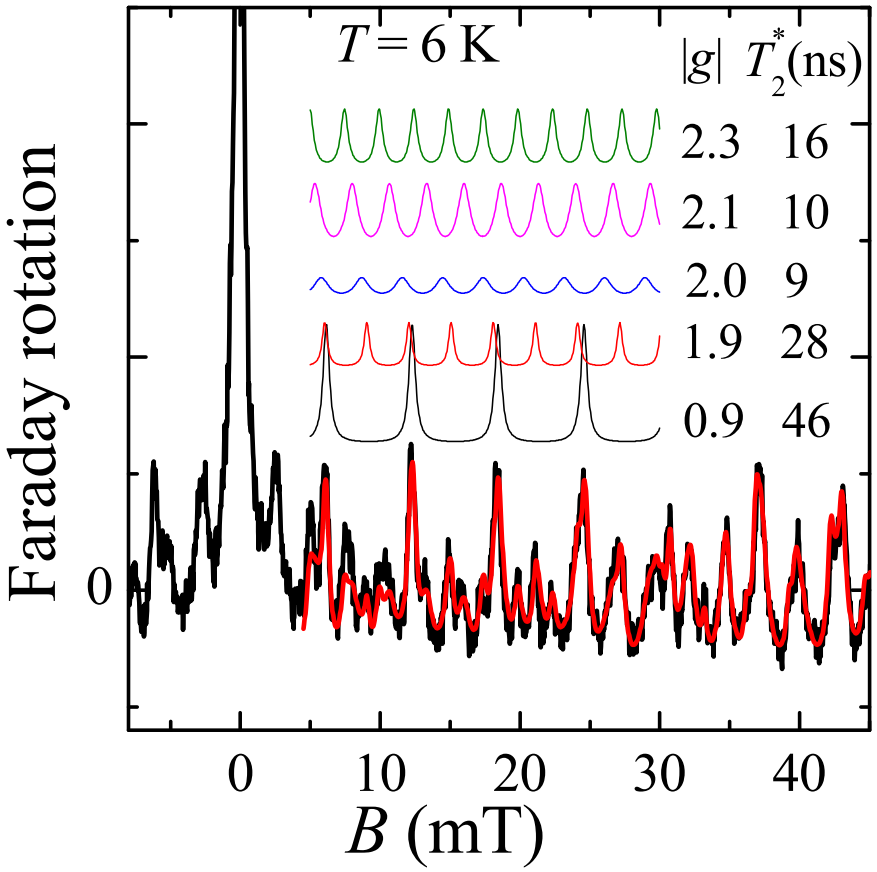


Рис. 5.14: Резонансное спиновое усиление в Ce^{3+}:YAG: зависимость фарадеевского вращения от магнитного поля при фиксированной задержке между импульсами накачки и зондирования. Красная кривая показывает аппроксимацию уравнением (5.12), учитывающим наличие нескольких резонансов. Над основным спектром показаны рассчитанные кривые РСУ для каждого спинового резонанса, входящего в итоговую зависимость. Температура $T = 6$ К, образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.1 ат. % [A13].

штабах времени рекомбинации (~ 70 нс [238]) в экспериментах “накачка–зондирование” и не проявляется в экспериментах ЭПР [A13].

Из Рис. 5.12 видно, что спиновая динамика затухает не очень быстро на диапазоне сканирования, особенно при малых значениях магнитного поля. При этом даже заметен сигнал, соответствующий отрицательной задержке между импульсами накачки и зондирования. Очевидно, этот сигнал остался от предыдущего лазерного импульса (период следования лазерных импульсов $T_0 = 13$ нс). Это означает, что время дефазировки спинового ансамбля T_2^* сравнимо или больше, чем T_0 и в данной системе возможно наблюдение резонансного спинового усиления. Спектр РСУ, показывающий зависимость сигнала фарадеевского вращения при малой отрицательной задержке между импульсами накачки и зондирования от магнитного поля, приведен на Рис. 5.14. Ожидаемо он состоит из множества пиков, соот-

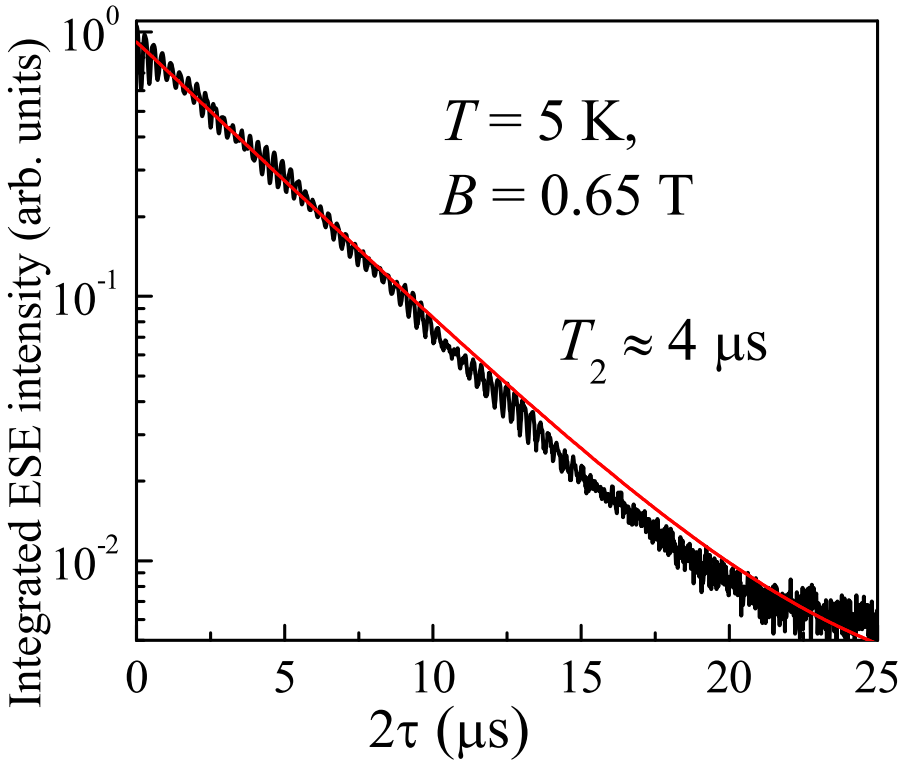


Рис. 5.15: Зависимость сигнала спинового эха в методике импульсного ЭПР от времени. Магнитное поле $B = 0.65$ Тл. Температура $T = 5$ K, образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. % [A13].

ветствующих условию $f_{\mathrm{L},i} = mf_{\mathrm{o}}$, $m = 0, 1, 2, ...$ для различных частот спиновой прецессии. Этот спектр может быть описан суммой выражений вида (1.7) [227]:

$$S = \sum_{i=1}^{7} \frac{\Delta S_{0,i}}{2} \left(\frac{\sinh(T_{\mathrm{o}}/T^*_{2,i})}{\cosh(T_{\mathrm{o}}/T^*_{2,i}) - \cos(\omega_{\mathrm{L},i} T_{\mathrm{o}})} - 1 \right), \tag{5.12}$$

где $\Delta S_{0,i}$, $T^*_{2,i}$ и $\omega_{\mathrm{L},i}$ – спиновая поляризация, создаваемая одним лазерным импульсом, время дефазировки и частота, соответственно, отвечающие i-му спиновому резонансу. В общем случае в системе должно быть 7 (6 для уровня 4f и 1 для уровня 5d) частот, однако в нашем эксперименте проявляются всего 5, так как некоторые моды сливаются. Аппроксимация спектра РСУ формулой (5.12) показана на Рис. 5.14 красной линией, тогда как выше приведены полученные из аппроксимации отдельные компоненты, их g факторы и времена спиновой дефазировки. В частности, видно, что для некоторых резонансов T^*_2 достигает десятков наносекунд. Интересно сравнить это время с реальным временем спиновой когерентности T_2, в которое не вносит вклад разброс частот. Это время было измерено Д. В. Азаматом методом спинового эха, реализованным с помощью импульсного ЭПР, и составило $T_2 \approx 4$ мкс (Рис. 5.15), что, как минимум, на два порядка больше, чем неоднородное время T^*_2.

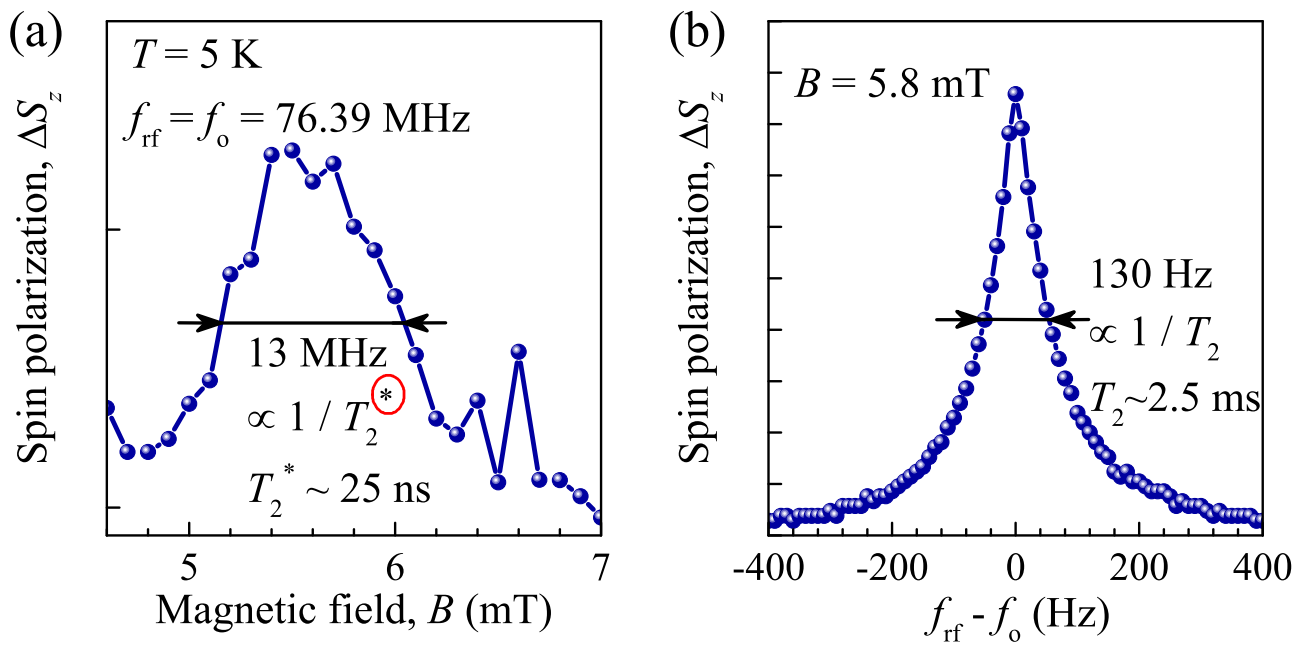


Рис. 5.16: (a) Зависимость сигнала фарадеевского вращения от магнитного поля при фиксированной частоте РЧ поля $f_{\rm rf} = f_{\rm o} = 76.39$ МГц. Данная зависимость аналогична обычному спектру РСУ, и ширина пика дает время T_2^*. (b) Спектр стимулированного РСУ: зависимость сигнала фарадеевского вращения от частоты РЧ поля, которая меняется в окрестности частоты следования лазерных импульсов $f_{\rm o}$, при фиксированном магнитном поле $B = 5.8$ мТл. (a),(b) Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, мощность лазера $P = 0.5$ мВт, температура $T = 5$ K [A2].

5.6 Стимулированное РСУ в Ce^{3+}:YAG: эксперимент

Эксперименты по поиску и исследованию стимулированного РСУ производились с использованием экспериментальной схемы, показанной на Рис. 5.2. Образец был помещен в гелиевый криостат проточного типа. К нему прикладывалось постоянное магнитное поле в геометрии Фогта и подавалась периодическая последовательность эллиптически поляризованных лазерных импульсов на длине волны 444 нм, которые одновременно использовались для создания и детектирования спиновой поляризации. Частота следования лазерных импульсов была фиксирована во всех экспериментах и составляла $f_{\rm o} = 76.4$ МГц. Также с помощью миниатюрной катушки к образцу прикладывалось РЧ поле с частотой $f_{\rm rf}$ близкой к частоте следования лазерных импульсов $f_{\rm o}$ и к ларморовской частоте $f_{\rm L}$. РЧ поле модулировалось с частотой $f_{\rm m} = 5$ кГц, если не оговорено иное, и на этой же частоте производилось синхронное детектирование. В отличие от экспериментов для n-GaAs здесь измерялась разность сигналов с высоким и низким уровнем РЧ поля [пик, а не провал на Рис. 5.9(c)]. Используемый образец Ce^{3+}:YAG имел толщину 0.5 мм и концентрацию ионов Ce^{3+} 0.5 ат.

%.

На Рис. 5.16(a) приведена зависимость сигнала фарадеевского вращения (спиновой поляризации) от магнитного поля при фиксированной частоте РЧ поля $f_{\mathrm{rf}} = f_{\mathrm{o}}$. Этот спектр воспроизводит участок обычного спектра РСУ (Рис. 5.14): широкое распределение ларморовских частот проходит через два совпадающих узких пика в распределении [Рис. 5.10(d)]. Ширина резонанса (полная ширина на половине высоты) в пересчете на частоту составляет 13 МГц и соответствует неоднородному времени спиновой дефазировки $T_2^* \approx 25$ нс. При сканировании же частоты РЧ поля относительно частоты следования импульсов получается спектр стимулированного РСУ [Рис. 5.16(b)], который имеет неожиданно маленькую ширину $\delta f_{\mathrm{rf}} = 130$ Гц (полная ширина на половине высоты)! Эта ширина соответствует времени спиновой когерентности $T_2 = 1/\pi\delta f_{\mathrm{rf}} \approx 2.5$ мс. Это значение уместно сравнить с временем спиновой когерентности 4 мкс, полученным стандартным методом спинового эха (Рис. 5.15). Ниже в этой главе мы обсудим причины существенного различия результатов в этих двух экспериментах.

Следует отметить, что поскольку в целях синхронного детектирования мы используем модуляцию РЧ поля на частоте f_{m}, то в спектрах стимулированного РСУ ожидаемо возникают два дополнительных пика на частотах $f_{\mathrm{o}} \pm f_{\mathrm{m}}$ (Рис. 5.17). При этом форма и ширина основного пика не зависят от частоты модуляции и слабо меняются при изменении профиля модуляции с синусоидального на прямоугольный. Далее мы будем использовать синусоидальную модуляцию с частотой $f_{\mathrm{m}} = 5$ кГц и исследовать только основной пик стимулированного РСУ.

Рассмотрим основные свойства стимулированного РСУ. Во-первых выясним влияние эллиптичности лазерного луча и его мощности на детектируемый сигнал (Рис. 5.18). Эллиптичность контролировалась с помощью линейного поляризатора, после которого устанавливается волновая пластинка $\lambda/4$, так, что мы можем контролировать угол ϕ между плоскостью линейной поляризации и быстрой осью волновой пластинки. Таким образом, оси полученного эллипса поляризации равны $E_0 \cos\phi$ и $E_0 \sin\phi$ [вставка на Рис. 5.18(a)], где E_0 — амплитуда электромагнитного поля, проходящего через линейный поляризатор. Вектор поля этой эллиптической поляризации для луча, падающего на образец, равен

$$\mathbf{E}_{\mathrm{in}} = E_0 \begin{pmatrix} \cos\phi \cos(\omega t) \\ \sin\phi \sin(\omega t) \end{pmatrix}, \tag{5.13}$$

где ω — частота света, а оси x и y направлены вдоль осей волновой пластинки. Его можно

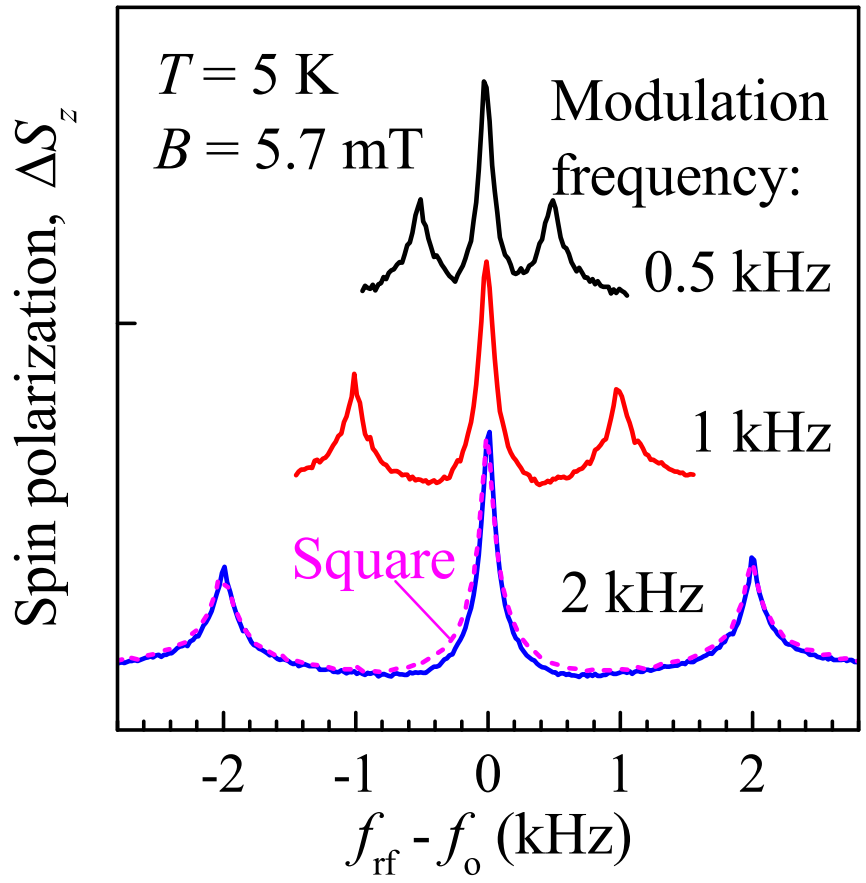


Рис. 5.17: Спектры стимулированного РСУ при различных частотах синусоидальной модуляции РЧ поля. Пунктирной линией показан спектр при модуляции РЧ поля прямоугольным профилем. Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, мощность лазера $P = 1$ мВт, магнитное поле $B = 5.7$ мТл, температура $T = 5$ K.

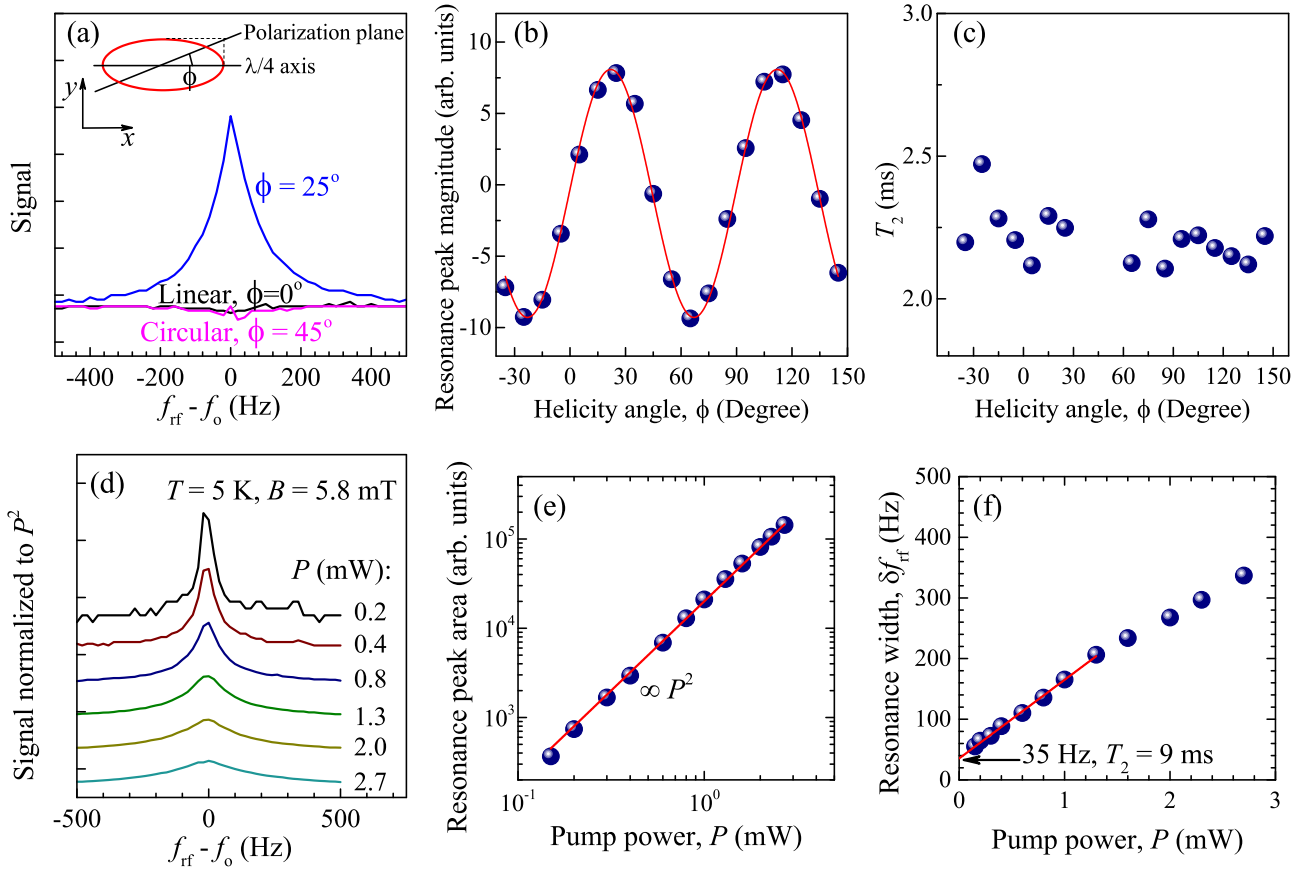


Рис. 5.18: (a) Спектры стимулированного РСУ при различных эллиптичностях лазерного луча, характеризуемых углом ϕ, определение которого показано во вставке. Мощность лазера $P = 0.5$ мВт. (b) Зависимость интегральной интенсивности сигнала от угла эллиптичности ϕ. Интегральная интенсивность определяется как площадь резонанса, а ее знак определяется как знак сигнала в экстремуме. Красная кривая показывает аппроксимацию экспериментальной зависимости формулой (5.16). (c) Зависимость времени T_2 от угла эллиптичности ϕ. (d) Спектры стимулированного РСУ при различных мощностях лазерного излучения P. Сигнал, полученный непосредственно с детектора нормирован на P^2. (e) Зависимость интенсивности сигнала (площади пика), регистрируемого непосредственно с детектора от мощности лазера P. Красная кривая показывает квадратичную зависимость. (f) Зависимость ширины резонанса от мощности лазера. Красная линия показывает линейную аппроксимацию, которая позволяет определить ширину резонанса и соответствующее время T_2 в пределе $P = 0$. (a)-(f) Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, магнитное поле $B = 5.8$ мТл, температура $T = 5$ K [A2].

представить в виде суммы двух ортогональных циркулярных поляризаций:

$$\mathbf{E} = E_0 \frac{\cos\phi + \sin\phi}{2} \begin{pmatrix} \cos(\omega t) \\ \sin(\omega t) \end{pmatrix} + E_0 \frac{\cos\phi - \sin\phi}{2} \begin{pmatrix} \cos(\omega t) \\ -\sin(\omega t) \end{pmatrix}. \tag{5.14}$$

Созданная спиновая поляризация пропорциональна разности интенсивностей двух циркулярных компонент $S_z \propto I_+ - I_- = 2I_0[(\cos\phi + \sin\phi)^2/4 - (\cos\phi - \sin\phi)^2/4] = I_0 \sin(2\phi)$, где I_0 — интенсивность света, прошедшего через линейный поляризатор. Спиновая поляризация в образце индуцирует фарадеевское вращение поляризации прошедшего света, которое проявляется как небольшой поворот осей эллипса или как небольшая дополнительная фаза $\delta\psi$, приобретаемая одной круговой поляризацией (σ^+) по отношению к другой (σ^-). Вектор поля, прошедший через образец, равен

$$\mathbf{E}_{\text{out}} = E_1 \frac{\cos\phi + \sin\phi}{2} \begin{pmatrix} \cos(\omega t + \delta\psi) \\ \sin(\omega t + \delta\psi) \end{pmatrix} + E_1 \frac{\cos\phi - \sin\phi}{2} \begin{pmatrix} \cos(\omega t) \\ -\sin(\omega t) \end{pmatrix}, \tag{5.15}$$

где $E_1 = \sqrt{\mathcal{T}} E_0$, а $\mathcal{T}$ — коэффициент пропускания образца (по интенсивности). Прошедший через образец свет затем, с использованием призмы Волластона, разделяется на два луча, имеющих ортогональные линейные поляризации и равные интенсивности при отсутствии Фарадеевского вращения. Это можно сделать, если оси призмы Волластона наклонены на 45° по отношению к осям эллипса поляризации, то есть к осям x и y. Взяв проекции поля $\mathbf{E}_{\text{out}}$ на оси призмы Волластона, вычислив соответствующие интенсивности путем возведения в квадрат амплитуд полей и взяв их разность, получим сигнал, измеренный балансным фотоприемником $\delta I = \mathcal{T} I_0 \cos(2\phi)\delta\psi$. Фаза, отвечающая за фарадеевское вращение $\delta\psi \propto S_z \propto I_0 \sin(2\phi)$, как было показано выше. Наконец, сигнал, измеренный балансным фотодетектором:

$$\delta I \propto \mathcal{T} I_0^2 \sin(2\phi)\cos(2\phi) = \frac{1}{2}\mathcal{T} I_0^2 \sin(4\phi). \tag{5.16}$$

Таким образом, если $\phi = 0°$, линейно поляризованный свет не создает спиновую поляризацию и не производит сигнала. Если $\phi = 45°$, циркулярно поляризованный свет не детектирует спиновую поляризацию и не дает сигнала. При промежуточном угле, например, $\phi = 25°$, свет одновременно создает и детектирует спиновую поляризацию [Рис. 5.18(a)]. Зависимость интегральной интенсивности сигнала, определяемой как площадь резонансного пика стимулированного РСУ (знак которого соответствует знаку сигнала в экстремуме), от эллиптичности падающего света показана на Рис. 5.18(b). Она, действительно, описывается

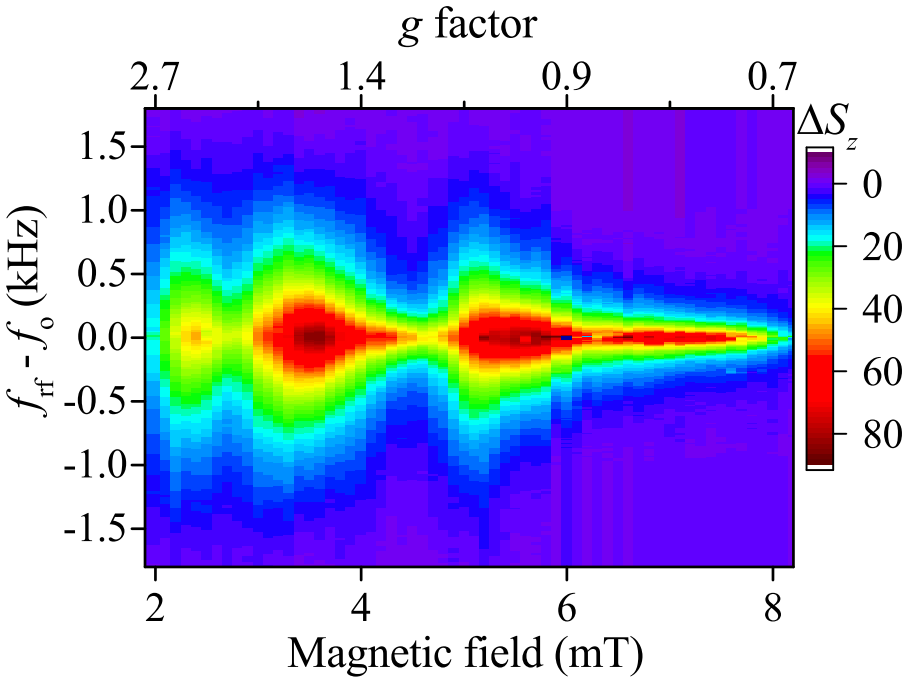


Рис. 5.19: Спиновая поляризация, показанная цветом, как функция магнитного поля и отстройки частоты РЧ поля f_{rf} от частоты следования лазерных импульсов f_{o}. Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, мощность лазера $P = 1$ мВт, температура $T = 5$ K [A2].

зависимостью $\sin(4\phi)$. Кроме того, из уравнения (5.16) видно, что интенсивность сигнала пропорциональна квадрату интенсивности лазерного луча I_0^2 (или мощности P^2), что также наблюдается в эксперименте [Рис. 5.18(e)].

Отметим, что ширина резонанса δf_{rf}, а значит и T_2, слабо зависит от эллиптичности лазера [Рис. 5.18(c)]. Однако δf_{rf} существенно зависит от полной мощности лазера P, что видно непосредственно из спектров РСУ [Рис. 5.18(d)]. Это, по-видимому, связано с тем, что лазерный луч не только создает и детектирует спиновую поляризацию, но также возмущает уже созданную поляризацию, нарушая ее когерентность. Таким образом, спектры, нормированные на P^2, уширяются, тогда как их амплитуда уменьшается. При этом интегральная интенсивность спектра пропорциональна P^2 [Рис. 5.18(e)]. Зависимость ширины стимулированного РСУ δf_{rf} от мощности P приведена на Рис. 5.18(f). При небольших мощностях эта зависимость близка к линейной, что позволяет аппроксимировать эту зависимость в $P = 0$ и определить ширину для “невозмущенной системы” и соответствующее время спиновой когерентности $T_2 \approx 9$ мс.

Зависимость спиновой поляризации одновременно от частоты РЧ поля и магнитного поля приведена на Рис. 5.19. Как уже отмечалось, ширина резонанса при сканировании f_{rf}, мала и составляет сотни Гц. При этом резонанс наблюдается в широком диапазоне полей,

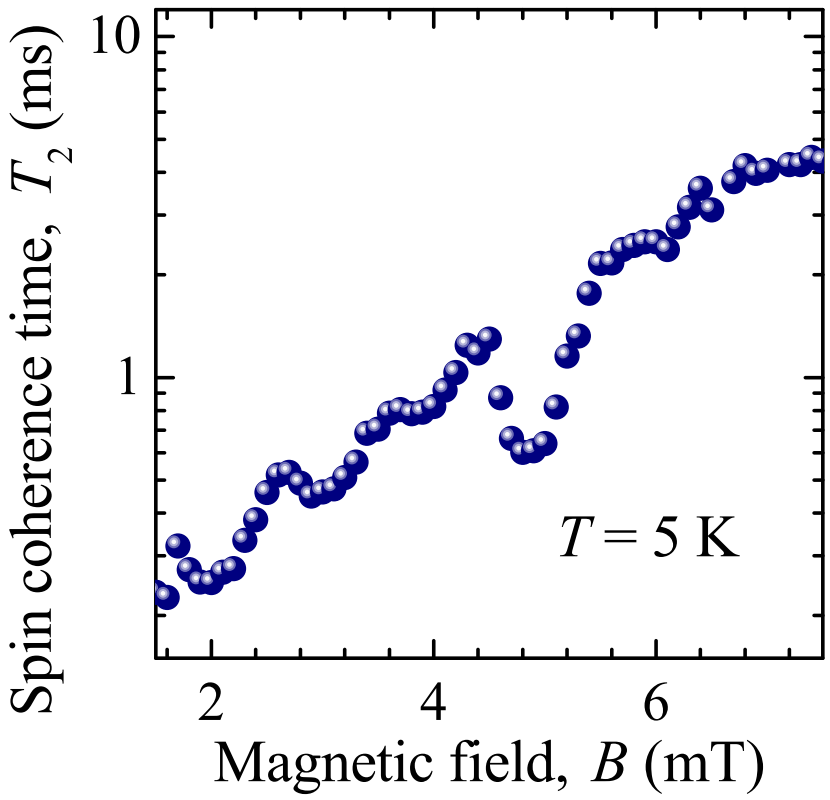


Рис. 5.20: Зависимость времени спиновой когерентности от магнитного поля. При этом ларморовская частота фиксирована и равна f_o. Таким образом, изменение магнитного поля соответствует изменению g фактора регистрируемого резонанса. Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, мощность лазера $P = 0.5$ мВт, температура $T = 5$ K [A2].

что связано с большим разбросом частот ларморовской прецессии и наличием нескольких g факторов при измерении ансамбля ионов Ce^{3+} в YAG (см. предыдущий раздел). При некоторых полях, 2.2, 3.3 и 5.5 мТл, сигнал резонансно увеличивается. Эти поля соответствуют g факторам $|g| = 2.5, 1.7$, и 1.0 [конфигурация с углом $\varphi = 0$ на Рис. 5.13(a)].

Зависимость T_2 от магнитного поля показана на Рис. 5.20. Здесь увеличение магнитного поля соответствует уменьшению g фактора, а ларморовская частота электронов, для которых определяется T_2, остается в районе $f_o = 76.39$ МГц. Зависимость имеет ряд резких минимумов, но, в целом, T_2 увеличивается более чем на порядок при увеличении поля от 2 до 6 мТл, а затем достигает насыщения примерно на значении 5 мс. Первоначальное увеличение T_2 с полем может быть связано с подавлением внешним магнитным полем флуктуаций ядерного поля, имеющих амплитуду порядка мТл [A13, 240, 21].

Увеличение температуры образца от 5 до 13 K ожидаемо приводит к уширению спектров стимулированного РСУ [Рис. 5.21(a)]. Температурные зависимости T_2 показаны на

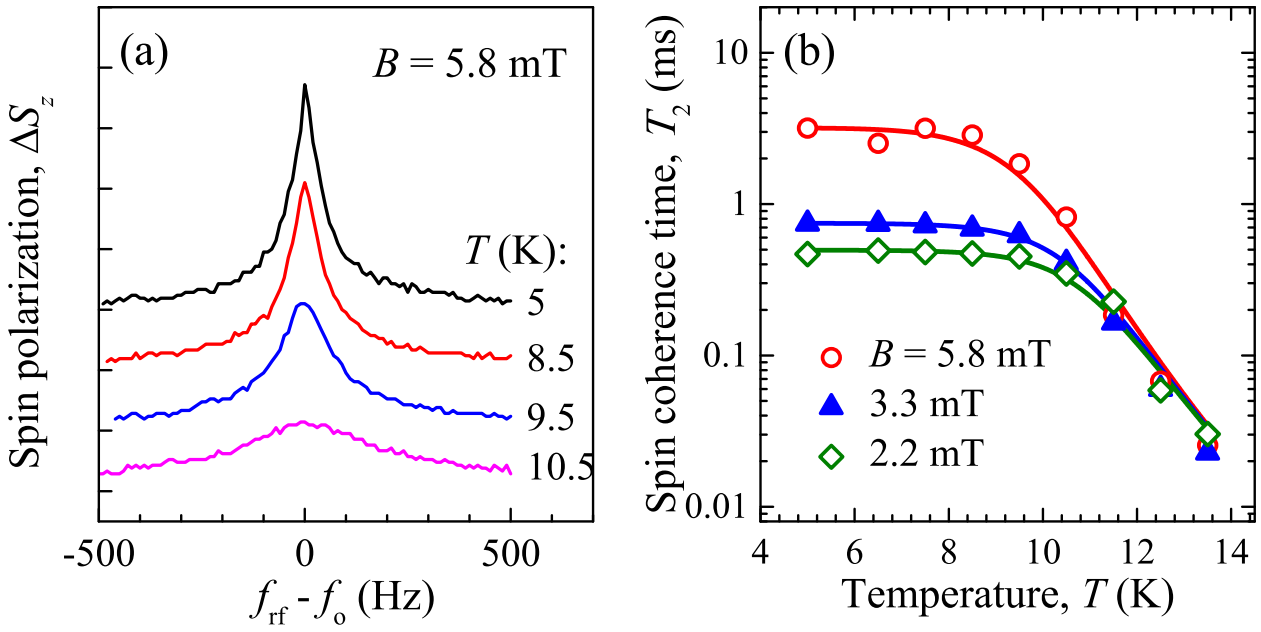


Рис. 5.21: (a) Спектры стимулированного РСУ при различных температурах. Магнитное поле $B = 5.8$ Тл. (b) Температурная зависимость времени спиновой когерентности для различных значений магнитного поля. (a),(b) Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, мощность лазера $P = 0.5$ мВт [A2].

Рис. 5.21(b) для различных магнитных полей близких к резонансам на Рис. 5.19. Наблюдаемое уменьшение T_2 с ростом T можно описать двухфононным рамановским процессом (T^9) в комбинации с активационной зависимостью на продольной оптической фононной моде [A13]:

$$\frac{1}{T_2(T)} = \frac{1}{T_2(T=0)} + AT^9 + C\exp(-E_a/k_B T). \tag{5.17}$$

Аппроксимация экспериментальных данных приведенной зависимостью дает коэффициенты $A = 4 \times 10^{-7}$ с$^{-1}$K^{-9}, $C = 1.4 \times 10^{10}$ с$^{-1}$ и энергию активации $E_a = 125$ см$^{-1}$, соответствующую энергии оптического фонона в YAG [239]. Аналогичные параметры использовались в работе [A13] для описания температурной зависимости T_1 в том же образце. Схожесть температурных зависимостей для наблюдаемых резонансов с разными g-факторами подтверждает, что они имеют одинаковую природу (4f-состояние иона Ce^{3+}). При $T \gtrsim 10$ K время T_2 ограничено релаксацией с участием фононов, аналогично T_1.

Итак, мы наблюдаем удивительно большое время T_2 миллисекундного масштаба в Ce^{3+}:YAG, которое имеет похожую температурную зависимость со временем T_1. Измеренное нами T_2 намного больше, чем неоднородное время $T_2^* \approx 25$ нс, измеренное с помощью стандартного метода РСУ. Более того, полученные значения на 3 порядка больше, чем $T_2 = 4$ мкс, измеренное для этой же системы методом спинового эха [A13]. Обычный метод спинового

эха позволяет устранить влияние статических неоднородностей, таких как как разброс g факторов и "замороженные" флуктуации ядерного поля. Однако T_2, измеренное с помощью спинового эха, ограничено медленными изменениями ядерного поля. Отметим, что измеренное нами время T_2 близко ко времени $T_2 = 2$ мс, полученному в работе [7] путем измерения спинового эха для одиночного иона Ce^{3+} с использованием протокола Карра-Перселла-Мейбома-Гилла [229, 230], отвязывающего электронный спин от ядерной подсистемы. Таким образом, наш метод позволяет не только преодолеть статическую неоднородность системы, но и избавиться от вклада медленно меняющихся флуктуаций ядерного поля, благодаря непрерывному воздействию на электронных спин РЧ полем. Это можно понять, рассмотрев классическую картину спиновой динамки, основанную на уравнении Блоха.

5.7 Теория стимулированного РСУ

Формально спектр стимулированного РСУ для системы с изотропной релаксацией $T_1 = T_2 = \tau_s$ может быть получен усреднением уравнения (5.8) по ларморовской частоте ω_L. Однако мы рассмотрим случай различных времен T_1 и T_2. Для этого обратимся к схеме решения уравнения Блоха, приведенной в разделе 4.3.2. Мы переходим во вращающуюся с частотой $\boldsymbol{\omega}_{rf}$ систему отсчета, где решение уравнения Блоха дается уравнениями (4.13) и (4.14). При этом мы можем пренебречь термически равновесной спиновой поляризацией в уравнении (4.13) в силу ее малости по сравнению со спиновой поляризацией, создаваемой оптически. Для решения уравнения (4.14) для спиновой поляризации $\mathbf{S}'$ во вращающейся системе отсчета:

$$\frac{d\mathbf{S}'}{dt} = \hat{A}\mathbf{S}' \tag{5.18}$$

$$\hat{A} = \begin{pmatrix} -1/T_1 & -\Omega_R \cos\varphi_{rf} & \Omega_R \sin\varphi_{rf} \\ \Omega_R \cos\varphi_{rf} & -1/T_2 & -\Delta\omega_L \\ -\Omega_R \sin\varphi_{rf} & \Delta\omega_L & -1/T_2 \end{pmatrix} \tag{5.19}$$

необходимо найти собственные значения матрицы $\hat{A}$, которые будут определять частоты спиновой прецессии и ее собственные векторы, которые будут определять прецессирующие спиновые компоненты. Собственные значения получаются решением кубического уравнения, которое довольно громоздко. Однако ситуация упрощается если учесть, что $1/T_1, 1/T_2 \ll \Omega_R$.

В этом случае собственные значения матрицы $\hat{A}$ даются выражениями:

$$\lambda_1 = -\frac{\Delta\omega_{\rm L}^2}{\Omega^2}T_1^{-1} - \frac{\Omega_{\rm R}^2}{\Omega^2}T_2^{-1} \tag{5.20}$$

$$\lambda_{2,3} = -\frac{\Omega_{\rm R}^2}{2\Omega^2}T_1^{-1} - \left(1 - \frac{\Omega_{\rm R}^2}{2\Omega^2}\right)T_2^{-1} \pm i\Omega. \tag{5.21}$$

Первое собственное значение соответствует компоненте спина, направленной вдоль вектора $\mathbf{\Omega} = \begin{pmatrix} \Delta\omega_{\rm L} \\ \Omega_{\rm R}\sin\varphi_{\rm rf} \\ \Omega_{\rm R}\cos\varphi_{\rm rf} \end{pmatrix}$ (напомним, $\Delta\omega_{\rm L} = \omega_{\rm L} - \omega_{\rm rf}$) и затухающей со временем τ_1. Два других собственных значения соответствуют компонентам спина перпендикулярным вектору $\mathbf{\Omega}$ и прецессирующим вокруг него с угловой скоростью $\pm\mathbf{\Omega}$ и затухающим со временем τ_2. При этом

$$\tau_1^{-1} = \frac{\Delta\omega_{\rm L}^2}{\Omega^2}T_1^{-1} + \frac{\Omega_{\rm R}^2}{\Omega^2}T_2^{-1}, \tag{5.22}$$

$$\tau_2^{-1} = \frac{\Omega_{\rm R}^2}{2\Omega^2}T_1^{-1} + \left(1 - \frac{\Omega_{\rm R}^2}{2\Omega^2}\right)T_2^{-1}. \tag{5.23}$$

Принимая во внимание условие $1/T_1, 1/T_2 \ll \Omega_{\rm R}$ и то, что частота Раби, вообще говоря, не когерентна с частотой повторения лазерных импульсов, при суммировании спиновой поляризации от большого числа лазерных импульсов мы можем отбросить компоненты спина, прецессирующие вокруг $\mathbf{\Omega}$. Тогда остается монотонно затухающая компонента спина, направленная вдоль $\mathbf{\Omega}$:

$$< \mathbf{S}'_n(t) >= \mathbf{\Omega}\frac{(\Delta\mathbf{S}_0\mathbf{\Omega})}{\Omega^2}\exp(-t/\tau_1). \tag{5.24}$$

Именно эта компонента отражает стимулированную РЧ полем спиновую прецессию в лабораторной системе отчета с частотой $\omega_{\rm rf}$. Здесь мы вычисляем спиновую динамику после создания спиновой поляризации $\Delta\mathbf{S}_0$ n-м лазерным импульсом. Также мы учтем то, что частота повторений лазерных импульсов не синхронизирована с РЧ полем. Поэтому, в каждой экспериментальной реализации начальное направление $\mathbf{\Omega}_{\rm R}$, которое задается фазой $\varphi_{\rm rf}$, можно считать случайным. Поэтому, мы можем усреднить спиновую динамику также по направлению $\mathbf{\Omega}_{\rm R}$. Учитывая что $\Delta\mathbf{S}_0 \perp \Delta\boldsymbol{\omega}_{\rm L}$, это дает

$$<< \mathbf{S}'_n(t) >>= \Delta\mathbf{S}_0\frac{\Omega_{\rm R}^2}{2\Omega^2}\exp(-t/\tau_1). \tag{5.25}$$

Отметим, что флуктуации $\omega_{\rm L}$ во времени, ограничивающие время T_2 в отсутствии РЧ поля при достаточно большом $\Omega_{\rm R}$ не приводят к существенному изменению спиновой динамики,

описываемой уравнением (5.25), объясняя длинное время спиновой когерентности, полученное в наших экспериментах. Также отметим, что динамика определяется временем T_2 при $\Omega_\mathrm{R} \gg |\Delta\omega_\mathrm{L}|$, тогда как при обратном соотношении она определяется временем T_1. Далее будет показано, что в экспериментах, представленных выше, доминирует вклад T_2. Для полного описания спиновой динамики нам нужно знать спектр флуктуаций ω_L. Однако, так как динамика спина не очень чувствительна к изменению $\Delta\omega_\mathrm{L}$, то для дальнейших выкладок мы будем считать эту величину постоянной. Далее мы суммируем вклад от предыдущих лазерных импульсов, проекция которых на направление $\Delta\mathbf{S}_0$ во вращающейся системе отсчета дает множители $\cos(\omega_\mathrm{rf} k T_\mathrm{o})$, где $k = 0$ соответствует текущему импульсу, $k = 1$ – предыдущему и т.д. В итоге мы приходим к выражению для полной усредненной спиновой поляризации уже в лабораторной системе отсчета

$$\Delta S_z = \Delta S_0 \frac{\Omega_\mathrm{R}^2}{2\Omega^2} \sum_{k=0}^{\infty} \exp(-kT_\mathrm{o}/\tau_1) \cos(\omega_\mathrm{rf} k T_\mathrm{o}) = \\ = \Delta S_0 \frac{\Omega_\mathrm{R}^2}{4\Omega^2} \left(\frac{\sinh(T_\mathrm{o}/\tau_1)}{\cosh(T_\mathrm{o}/\tau_1) - \cos(\omega_\mathrm{rf} T_\mathrm{o})} + 1 \right). \quad (5.26)$$

За исключением префактора, и знака перед 1 (который связан с учетом последнего импульса), это выражение в точности совпадает с классическим выражением для РСУ (1.7), где ω_L заменено на ω_rf, а T_2^* заменено на τ_1. Учитывая что $T_\mathrm{o} \ll \tau_1$, в окрестностях резонанса $\omega_\mathrm{rf} = m\omega_\mathrm{o}$, $m = 0, 1, 2...$, мы приходим к выражению:

$$\frac{\Delta S_z}{\Delta S_0} \approx \frac{\Omega_\mathrm{R}^2}{2\Omega^2} \frac{\tau_1}{T_\mathrm{o}} \times \frac{1}{1 + \tau_1^2(\omega_\mathrm{rf} - m\omega_\mathrm{o})^2}. \quad (5.27)$$

Напомним, что время τ_1 определяется формулой (5.22) и при $|\Delta\omega_\mathrm{L}| \ll \Omega_\mathrm{R}$ $\tau_1 \approx T_2$. Вообще говоря, для статических флуктуаций ω_L нужно сделать свертку выражения (5.27) с распределением ω_L, однако мы ограничимся качественными рассуждениями. В нашем эксперименте, если мы настраиваем магнитное поле так, что средняя ларморовская частота совпадает с ω_o, то $\Delta\omega_\mathrm{L}$ можно оценить из полуширины спинового резонанса обычного РСУ [Рис. 5.16(а)], которая составляет $\sim 2\pi\times$ (6 МГц). Это значение нужно сравнить с частотой Раби, которую можно оценить из амплитуды напряжения, которое подавалось на РЧ катушку, как это описано в разделе 4.2. Амплитуда РЧ поля b может быть вычислена как $b = kU_\mathrm{rf}$. Коэффициент k можно оценить как $k = 1/(2\pi^2 f_\mathrm{rf} N r^2) \approx 0.13$ mT/V, где $r \approx 0.7$ мм – радиус катушки, $N = 10$ – количество витков [A7]. В описанных здесь экспериментах использовалось максимально доступное напряжение $U_\mathrm{rf} = 10$ В, что соответствует $b = 1.3$ mT

и частоте Раби $\Omega_{\mathrm{R}} = |g|\mu_{\mathrm{B}}b/2\hbar \approx 2\pi \times 9$ МГц для $|g| = 1.0$. Таким образом, $|\Delta\omega_{\mathrm{L}}|/\Omega_{\mathrm{R}} \sim 0.67$, $\tau_1^{-1} \approx 0.3T_1^{-1} + 0.7T_2^{-1}$ и ширина спектра стимулированного РСУ определяется в основном временем T_2.

Интересно исследовать как поведет себя ширина спектра стимулированного РСУ, при уменьшении частоты Раби, то есть РЧ напряжения. Спектры РСУ при различных напряжениях приведены на Рис. 5.22(a). Соответствующая зависимость ширины спектра от напряжения или частоты Раби приведена на Рис. 5.22(c). Видно, что ширина возрастает, что также следует из уравнения (5.22) в предположении $T_1 > T_2$. Действительно, аппроксимация экспериментальной зависимости этим уравнением (красная линия) дает $T_1 = 1.6$ мс, $T_2 = 1.0$ мс, тогда как отношение $|\Delta\omega_{\mathrm{L}}|/\Omega_{\mathrm{R}} = 0.6$ для $U_{\mathrm{rf}} = 10$ В, что хорошо согласуется с оценкой, приведенной выше. При этом зависимость интенсивности сигнала (площади пика) от напряжения или частоты Раби [Рис. 5.22(b)] близка к квадратичной при малых Ω_{R}, а затем начинает насыщаться в качественном согласии с префактором формулы (5.27) (для свертки данной формулы с лоренцевским распределением $\Delta\omega_{\mathrm{L}}$ это было бы не так). Таким образом, ширина резонанса стимулированного РСУ при малых Ω_{R} может быть использована для определения времени продольной релаксации T_1, а при больших Ω_{R} она дает время спиновой когерентности T_2.

5.8 Выводы по данной главе

Итак, в данной главе нами был продемонстрирован комбинированный резонанс – оптическое резонансное спиновое усиление в комбинации с электронным парамагнитным резонансом. В условиях комбинированного резонанса был предсказан и обнаружен эффект стимулированного резонансного спинового усиления, возникающий в неоднородных системах с локализованными электронами при воздействии на них РЧ полем и периодическими лазерными импульсами. На основе этого эффекта разработан простой принцип определения времени спиновой когерентности T_2. Для системы редкоземельных ионов церия Ce^{3+} в кристалле YAG был измерен рекордно узкий спиновый резонанс с шириной, при определенных условиях, менее 100 Гц, соответствующей миллисекундному времени спиновой когерентности. Это время намного больше времени $T_2 = 4$ мкс, полученного из экспериментов по спиновому эху и еще намного больше, чем время неоднородной спиновой дефазировки $T_2^* = 25$ нс, полученное в обычных экспериментах РСУ. Это можно объяснить тем, что при стимулированном РСУ РЧ поле “отрывает” электронные спины от шумного окружения, удлиняя тем самым T_2. Этот эффект может быть использован для когерентной оптической манипуляции

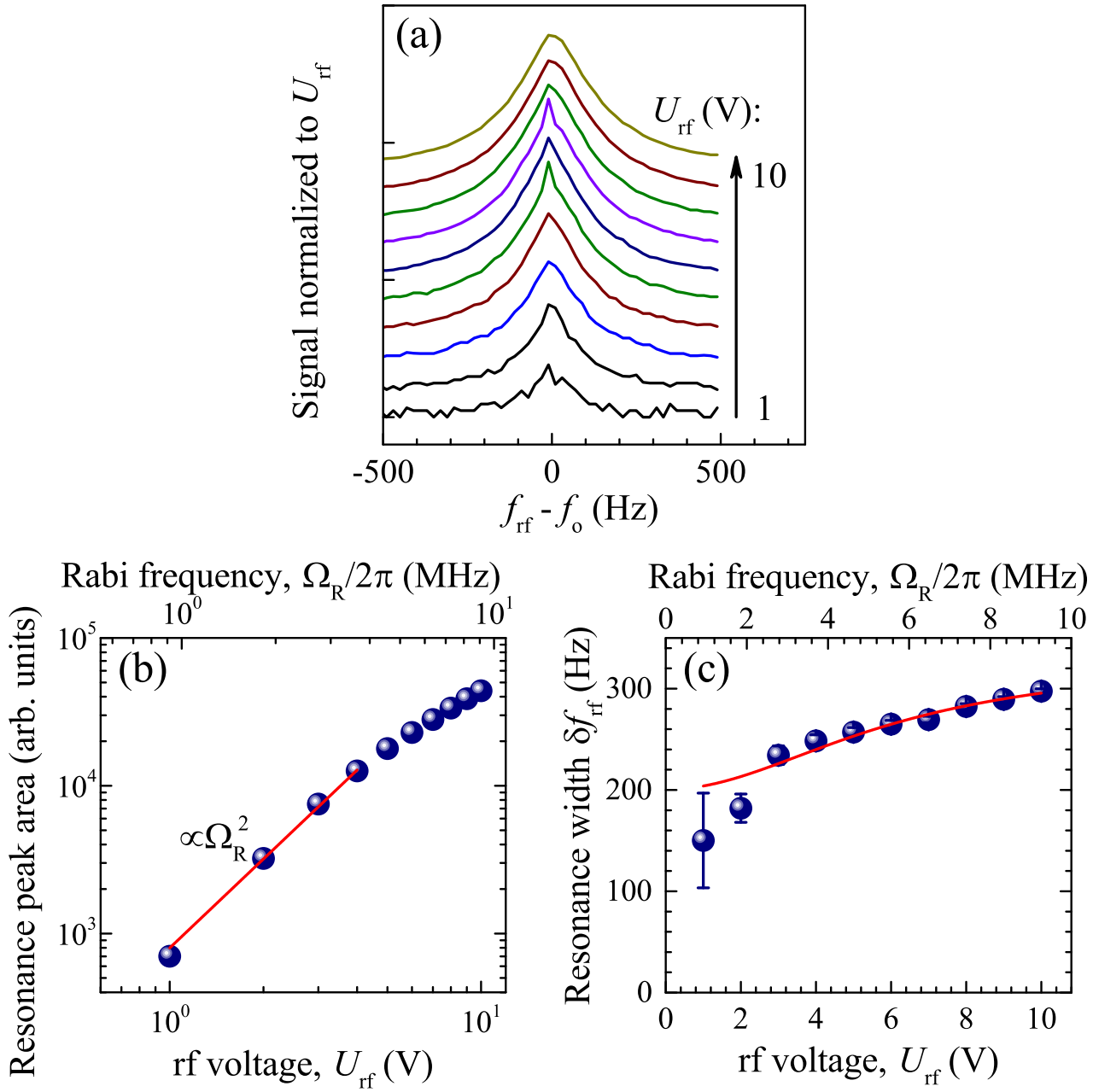


Рис. 5.22: (a) Спектры стимулированного РСУ при различных амплитудах РЧ напряжения U_{rf}, подаваемого на катушку. Спектры нормированы на U_{rf}. (b) Зависимость интенсивности сигнала (площади пика) от амплитуды РЧ напряжения (нижняя шкала) или частоты Раби (верхняя шкала). Красная кривая показывает квадратичную зависимость. (c) Зависимость ширины резонанса от амплитуды РЧ напряжения (нижняя шкала) или частоты Раби (верхняя шкала). Красная линия показывает аппроксимацию уравнением (5.22). (a)-(c) Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, мощность лазера $P = 1$ мВт, магнитное поле $B = 5.2$ мТл, температура $T = 5$ К.

спиновой системой частично свободной от декогерентности, вносимой окружением.

Глава 6

Селективное определение времени продольной спиновой релаксации: Резонансная спиновая инерция

6.1 Введение

В предыдущих главах мы уже рассматривали вопрос определения времени продольной (то есть вдоль магнитного поля) спиновой релаксации T_1. Важность этого параметра трудно переоценить, так как именно T_1 определяет пригодность системы для когерентной манипуляции спином, что может быть полезно для практических применений. Действительно, T_1 задает абсолютный предел для времени спиновой когерентности T_2, которое, как мы видели в предыдущей главе, может быть увеличено за счет использования РЧ поля, однако оно не может быть больше $2T_1$ [8]. Кроме того, как было видно из предыдущих глав, зависимость T_1 от магнитного поля и температуры дает информацию о механизмах спиновой релаксации в системе и даже о характере электронной проводимости. В главе 2 было показано, что T_1 можно измерить расширенным методом накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения. Этот метод является одним из самых предпочтительных, так как он позволяет напрямую измерить продольную спиновую динамику в очень большем диапазоне времен, которая может и не описываться единым временем T_1. Также в главе 4 был предложен метод измерения продольной спиновой релаксации после резкого изменения магнитного поля, который, однако, имеет ограничения по чувствительности. Другие оптические методы измерения T_1 – это спиновая инерция при модуляции оптической накачки [141, 142, 77] и измерение динамики фотолюминесценции с разрешением по поляризации

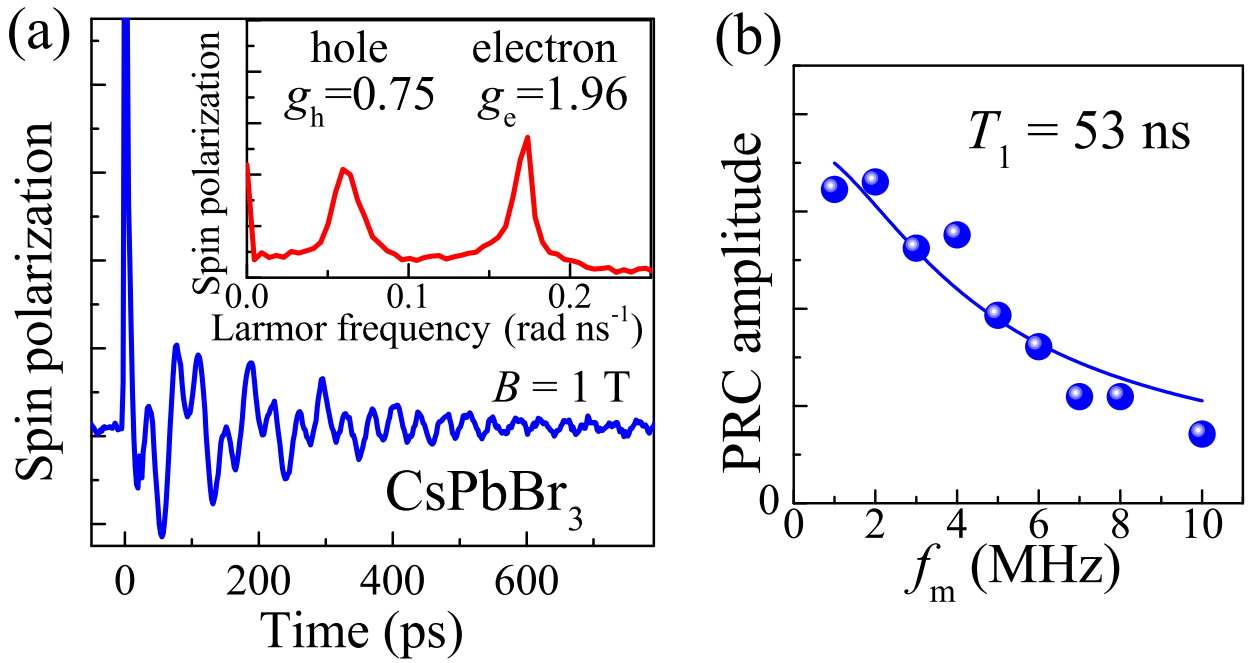


Рис. 6.1: (a) Динамика спиновой поляризации перовскитов $CsPbBr_3$, измеренная методом накачки–зондирования. Во вставке показано преобразование Фурье данной динамики, показывающее спектр частот ларморовской прецессии. Магнитное поле $B = 1$ Тл приложено в геометрии Фогта, температура $T = 10$ К. (b) Зависимость спиновой поляризации от частоты модуляции лазера накачки (кривая спиновой инерции) в малом магнитном поле, приложенном в геометрии Фарадея. Сплошная линия показывает аппроксимацию экспериментальной зависимости формулой (1.11). Температура $T = 2$ К [A6].

[87, 17, 19, 18, 20]. Все перечисленные методы при всех их преимуществах, однако, обладают одним недостатком: они не позволяют определить какому g фактору соответствует измеренное время T_1. Действительно, данные методы основаны на измерении продольной спиновой динамики, которая является неосциллирующей. То есть она не дает информацию о частоте спиновой прецессии для спинового резонанса, которому соответствует T_1. Это не является проблемой если в системе присутствует лишь один спиновый резонанс как, например, в n-GaAs, продольная спиновая релаксация в котором, рассматривалась в предыдущих главах. Действительно, можно отдельно измерить спиновую динамику при направлении магнитного поля отличном от фарадеевского и измерить единственную частоту спиновой прецессии, которая, вероятно, и будет соответствовать времени T_1, измеренному из неосциллирующей динамики продольной спиновой компоненты. Однако если в системе присутствует несколько спиновых резонансов, то приписать T_1 одному из них становится проблематично. Примеры таких систем встречаются довольно часто. Два спиновых резонанса, соответствующие электронам и дыркам, встречаются во многих перовскитах: нанокристаллах $CsPbBr_3$ [143], объемных кристаллах $CsPbBr_3$ [A6], $FA_{0.9}Cs_{0.1}PbI_{2.8}Br_{0.2}$ [4], и $MAPbI_3$ [241]. Типичная спиновая динамика в геометрии Фогта в таких системах показана на Рис. 6.1(а), на примере объемного кристалла $CsPbBr_3$ [A6]. На первый взгляд, спиновая прецессия является нерегулярной, однако, как видно из преобразования Фурье спиновой динамики, показанного на вставке, это связано с двумя модами прецессии, соответствующими электронам и дыркам. Время T_1 в этой системе было измерено оптическим методом спиновой инерции [141] из зависимости амплитуды спинового сигнала от частоты модуляции поляризации луча накачки. Однако приписать это время определенному типу носителей из этого измерения не представляется возможным. Еще один пример – это спиновая динамика в квантовых точках (Рис. 3.5), которая также содержит вклад электронов и дырок. При этом, неясно какому типу носителей соответствует время T_1, измеренное в работе [A9]. Другая возможная ситуация – это наличие нескольких резонансов в неоднородной системе, когда каждый из резонансов соответствует определенной группе спинов. Яркий пример – это ансамбль ионов церия, встроенных в решетку YAG. Каждый ион может занимать один из шести магнитно-неэквивалентных узлов решетки и анизотропный g тензор электрона на 4f уровне может иметь шесть различных ориентаций. Таким образом, при измерениях с ансамблем ионов Ce^{3+} наблюдается 6 частот спиновой прецессии и, соответственно, 6 g факторов. При этом измерение времени T_1 оптическим методом спиновой инерции дает усредненное значение, не позволяя приписать T_1 конкретным g факторам.

С другой стороны, есть методы измерения времени T_1, основанные на эффекте ЭПР,

то есть на приложении к образцу РЧ либо микроволнового поля. Это методы импульсного ЭПР [49], восстановления насыщения (saturation recovery) [242], восстановления инверсии (inversion-recovery) [243] и модуляции микроволновой амплитуды [244, 245]. Эти методы позволяют использовать РЧ поле резонансное с определенной частотой спиновой прецессии и селективно определять время T_1 для конкретного g фактора. Однако существенным недостатком данных методов является низкая чувствительность, которая определяется термически равновесной спиновой поляризацией. Последняя, в свою очередь, возрастает с увеличением магнитного поля и понижением температуры. Таким образом, методы на основе ЭПР применимы в основном к объемным системам при низких температурах и в больших магнитных полях (порядка 1 Тл). Также в предыдущей главе нами был предложен весьма интересный способ определения времени T_1, наряду со временем T_2, из зависимости ширины резонанса стимулированного РСУ от частоты Раби. Он может быть использован при большом сигнале стимулированного РСУ, достаточном для определения ширины резонанса при малых частотах Раби.

В данной главе будет представлен метод резонансной спиновой инерции, обладающий чувствительностью оптических методов и селективностью методов на основе ЭПР. Идея этого метода основана на оптической накачке спиновой поляризации вдоль постоянного магнитного поля и воздействии на эту поляризацию резонансным РЧ полем, которое ее уменьшает, что детектируется также оптически, посредством измерения фарадеевского/керровского вращения. Модулируя амплитуду РЧ поля, можно наблюдать модуляцию спиновой поляризации, глубина которой зависит от соотношения между периодом модуляции и временем T_1, подобно тому как в оптическом методе спиновой инерции модулируется поляризация луча накачки [141]. Возможности данного метода опробованы в системе Ce^{3+}:YAG, где определено время T_1, соответствующее различным g факторам и измерена анизотропия времени T_1. Оказывается, что зависимости амплитуды и задержки модуляции спиновой поляризации от частоты модуляции позволяют не только определить T_1, соответствующее каждому конкретном g фактору, но и определить характер разброса частот ларморовской прецессии, который определяет ширину спинового резонанса: определяется ли он статическими или меняющимися во времени флуктуациями. Именно последний случай имеет место в Ce^{3+}:YAG.

6.2 Детектирование магнитного резонанса с помощью оптической накачки и измерения фарадеевского вращения

Для демонстрации возможностей метода резонансной спиновой инерции была выбрана системе ионов Ce^{3+} в решетке YAG, тот же образец с концентрацией ионов Ce 0.5 ат. %, что исследовался в предыдущей главе. Для реализации данного метода использовалась та же экспериментальная схема, что и в предыдущих двух главах, изображенная на Рис. 5.2. Однако в экспериментах, которые будут обсуждаться здесь, постоянное магнитное поле было приложено под углом θ по отношению к нормали к образцу. Также для метода резонансной спиновой инерции совсем не обязательно использование импульсного лазера. Он был использован лишь для удвоения частоты и получения необходимой длины волны (444 нм). Схема оптической ориентации электронов в Ce^{3+}:YAG была рассмотрена в разделе 5.5 (см. Рис. 5.11).

Итак, в результате оптической ориентации электронный спиновый ансамбль приобретает спиновую поляризацию $\mathbf{S}$ вдоль лазерного луча, который за счет эллиптической поляризации служит как накачкой, так и зондированием. Поперечная составляющая $\mathbf{S}$, перпендикулярная частоте $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$ (ее направление может отличаться от $\mathbf{B}$ вследствие анизотропии g фактора), прецессирует вокруг $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$ и быстро дефазирует за время T_2^*, если только частота повторение лазерных импульсов не совпадает с ларморовской частотой. Последний случай рассматривался в предыдущей главе и здесь обсуждаться не будет, тем более, что лазерное излучение для реализации резонансной спиновой инерции не обязано быть импульсным. С другой стороны, продольная (вдоль $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$) компонента $\mathbf{S}$ живет гораздо дольше, она затухает со временем T_1. В результате спиновая поляризация накапливается вдоль $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$ [Рис. 6.2(b)] и насыщается на уровне, пропорциональном мощности накачки P и T_1. Приложение РЧ поле снижает эффективность накопления спина за счет “откручивания” спиновой поляризации от направления $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$. Другими словами, можно сказать, что РЧ поле отогревает спиновую систему, выравнивая заселенности спиновых состояний вдоль поля и в противоположном направлении. Эффект РЧ поля максимален, когда его частота f_{rf} попадает в резонанс с ларморовской частотой f_{L}. Это иллюстрирует эксперимент в котором мы измеряем разность сигнала без и с РЧ полем. Результат этого эксперимента представлен на Рис. 6.2(a), который показывает зависимость сигнала фарадеевского вращения (пропорционального разности спиновой

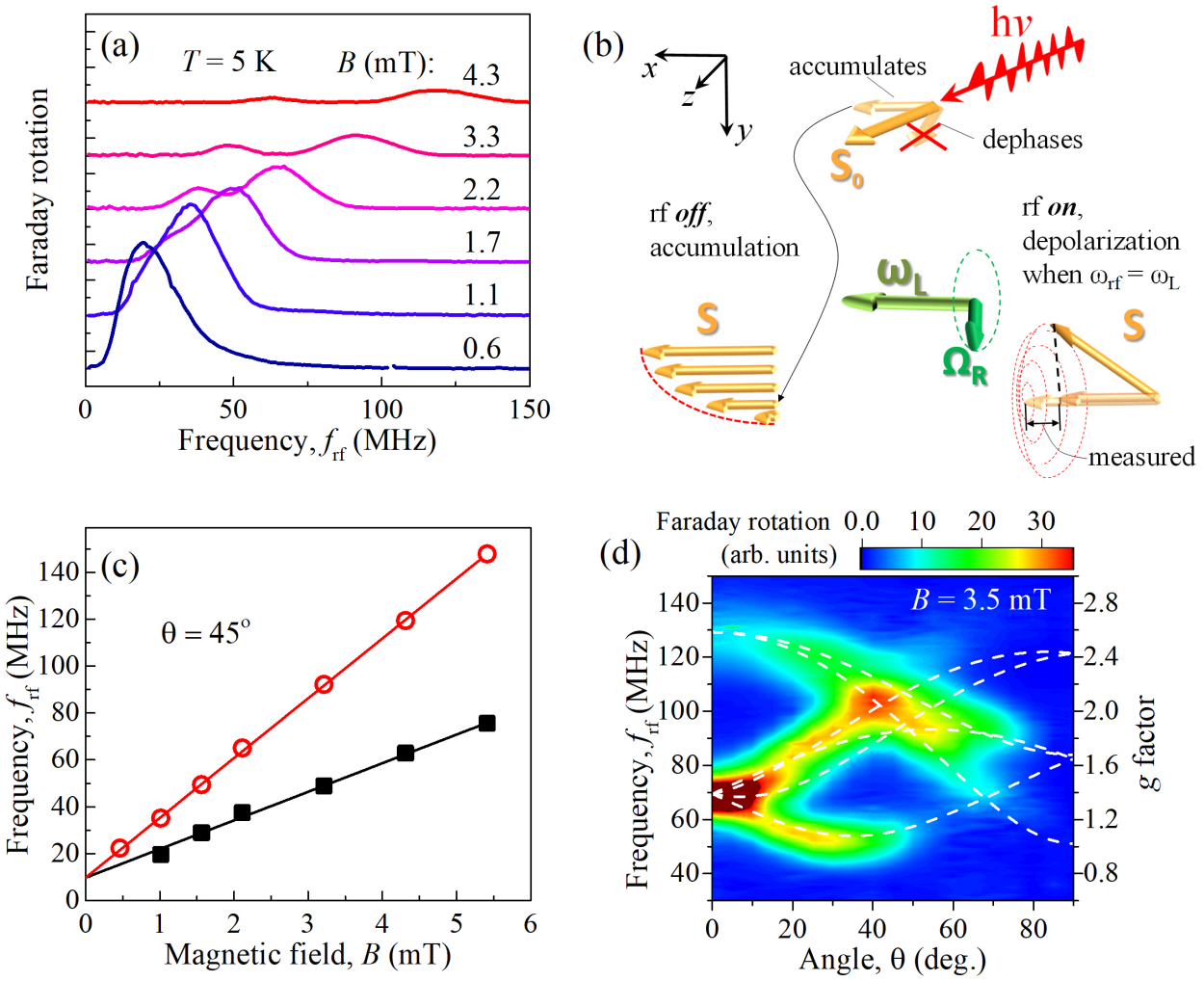


Рис. 6.2: (a) Зависимости сигнала фарадеевского вращения от частоты РЧ поля (спектры ОДМР) при различных значениях постоянного магнитного поля, ориентированного под углом $\theta = 45°$ к нормали к образцу. (b) Схематическая иллюстрация процессов, происходящих в спиновой системе. Оптически созданная спиновая поляризация накапливается вдоль магнитного поля. РЧ поле приводит к уменьшению накопленной поляризации, если его частота совпадает с ларморовской частотой. Таким образом, измеряя зависимость накопленной поляризации от частоты РЧ поля можно измерить спиновый резонанс. (c) Зависимости ларморовских частот, определенных из ОДМР спектров от магнитного поля. Линии показывают линейные аппроксимации. (d) Анизотропия g фактора. Зависимость сигнала фарадеевского вращения (цветовая шкала) от угла наклона магнитного поля по отношению к нормали к образцу и от частоты РЧ поля. Правая шкала показывает пересчитанный g фактор. Пунктирные линии показывают расчет анизотропии g фактора в соответствии с уравнением (5.10). $B = 3.5$ мТ. (a),(c),(d) Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, $T = 5$ К [A1].

поляризации с и без РЧ поля) от частоты РЧ поля при различных значения постоянного поля. В зависимостях видны ярко выраженные пики, когда f_{rf} совпадает с f_{L}. Это позволяет измерить оптически-детектируемый магнитный резонанс (ОДМР). Положения пиков в спектрах зависят от постоянного магнитного поля B, соответствующая зависимость показана на Рис. 6.2(c). Зависимость линейная в соответствии с уравнением $f_{\mathrm{L}} = |g|\mu_{\mathrm{B}}B/2\pi\hbar$. Небольшое смещение при $B = 0$ предположительно связано с наличием в системе внутренних полей, вызванных сверхтонким взаимодействием электронных и ядерных спинов. Два пика соответствуют g факторам со значениями $|g| = 0.9$ и $|g| = 1.9$. Различные g-факторы в системе Ce^{3+}:YAG, как уже обсуждалось выше, возникают из-за шести различных ориентаций сильно анизотропного g-тензора ионов Ce^{3+}, внедренных в шесть различных c-сайтов в решетке YAG. Действительно, положение пиков в спектрах ОДМР сильно зависит от угла θ магнитного поля относительно нормали к образцу [Рис. 6.2(d)]. Угловые зависимости наблюдаемых резонансов хорошо описываются уравнением (5.10) и показаны пунктирными линиями на рисунке. Следует отметить, что сигнал уменьшается с углом θ при переходе от геометрии Фарадея к геометрии Фогта. Действительно, спиновая поляризация создается вдоль нормали к образцу, а ее составляющая вдоль $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$, которая накапливается убывает с увеличением θ. Детектируемый сигнал, в свою очередь, пропорционален составляющей накопленного спина вдоль нормали к образцу, что дополнительно усиливает убывание сигнала с θ.

6.3 Обоснование метода резонансной спиновой инерции

6.3.1 Качественные соображения

Итак, для нас важно, что мы можем воздействовать на отдельные спиновые резонансы и детектировать результат этого воздействия. В отсутствие РЧ поля спиновая поляризация при оптической накачке насыщается на уровне, пропорциональном времени спиновой релаксации T_1 и скорости накачки P. При включении РЧ поля спиновая поляризация начинает уменьшаться и достигает насыщения на более низком уровне. Измеряемый сигнал ΔS определяется разностью этих уровней насыщения. Это справедливо пока период модуляции РЧ поля много больше, чем время T_1, так что спиновая поляризация успевает накапливаться, когда РЧ поле выключено, и успевает затухать, когда РЧ поле включено. При увеличении частоты модуляции РЧ поля f_{m} так, что период модуляции $T_{\mathrm{m}} = 1/f_{\mathrm{m}}$ становится меньше T_1, изменение спиновой поляризации за половину периода модуляции становится меньше, ΔS уменьшается. Этот факт схематически проиллюстрирован на Рис. 6.3(a) и может быть

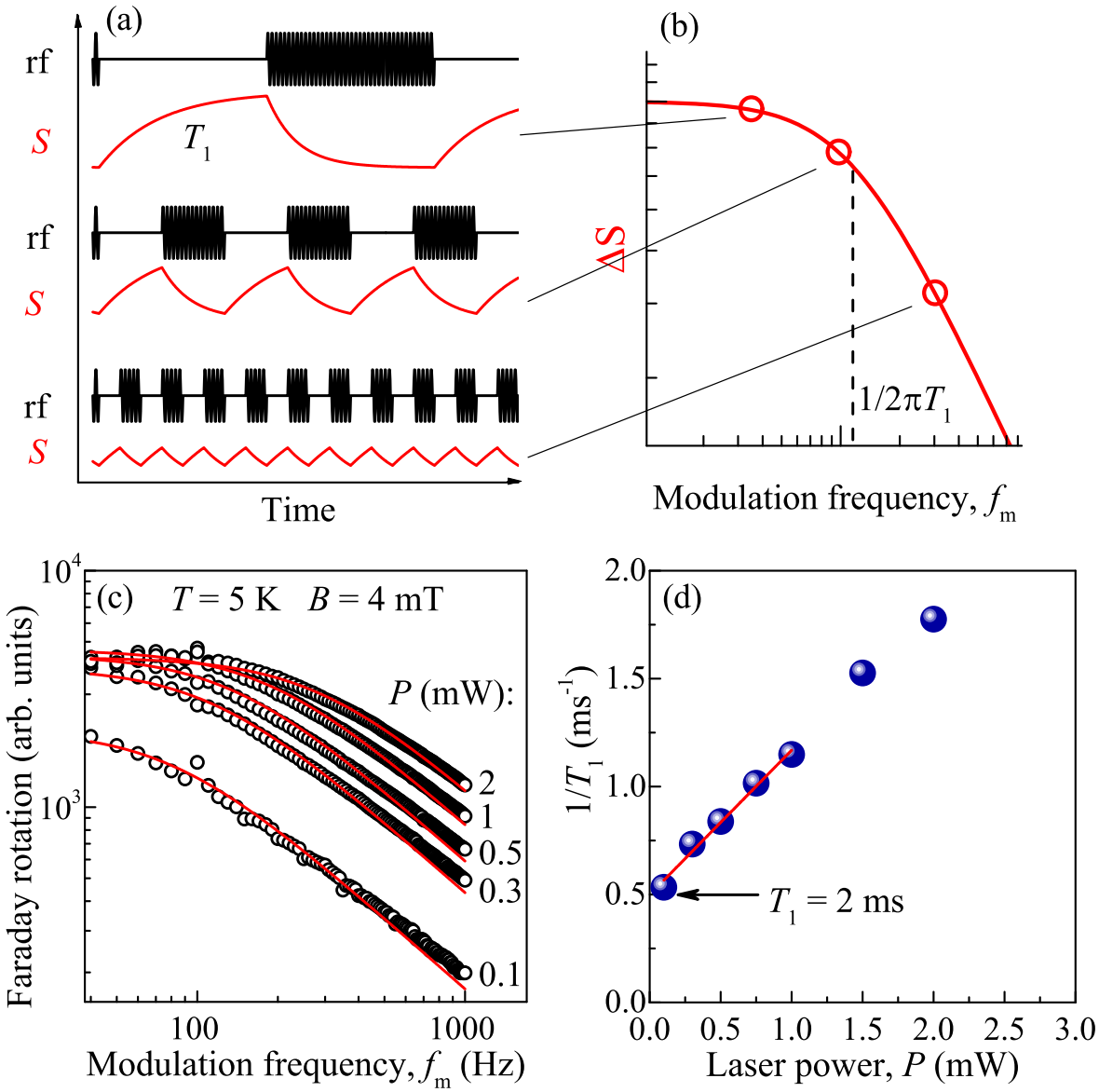


Рис. 6.3: Демонстрация эффекта резонансной спиновой инерции [A1]. (a) Протоколы РЧ поля с различными частотами модуляции и соответствующая рассчитанная динамика спиновой поляризации. Когда период модуляции РЧ поля становится меньше T_1, глубина модуляции спиновой поляризации ΔS уменьшается. (b) Рассчитанная спиновая поляризация ΔS в зависимости от частоты модуляции РЧ поля (кривая спиновой инерции). (c) Измеренные зависимости сигнала фарадеевского вращения от частоты модуляции РЧ поля (кривые спиновой инерции) для различных мощностей лазера. Красные линии показывают аппроксимацию экспериментальных зависимостей формулой (6.19). (d) Скорость продольной спиновой релаксации $1/T_1$, извлеченная из кривых спиновой инерции, в зависимости от мощности лазера. Красная линия показывает линейную аппроксимацию, которая используется для экстраполяции зависимости в $P = 0$ и определения времени T_1, соответствующего "невозмущенной" системе. (c)-(d) Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, $B = 4$ мТл, $\theta = 12°$, $f_{rf} = 80$ МГц, $T = 5$ К.

использован для определения времени T_1. Действительно, если измерить зависимость ΔS от f_m, то при малых f_m сигнал остается постоянным, а при $f_\mathrm{m} \gg 1/T_1$ сигнал уменьшается, и, как будет видно из дальнейшего рассмотрения, он спадает как $1/f_\mathrm{m}$ [Рис. 6.3(b)]. Частота перехода зависимости $\Delta S(f_\mathrm{m})$ от константы к быстрому убыванию дает $1/T_1$. Это составляет суть метода спиновой инерции, который был реализован полностью оптически с раздельными лучами накачки и зондирования и изменением частоты модуляции луча накачки [141]. В нашем случае модулируется амплитуда РЧ поля, а не оптическая накачка, что позволяет настраивать частоту РЧ поля и, следовательно измерять T_1 для конкретного спинового резонанса. При малой амплитуде радиочастотного поля, используемого в большинстве наших экспериментов, зависимость ΔS от f_m может быть описана уравнением спиновой инерции (6.19). Отметим, что данное уравнение применимо не для всех систем, о чем будет рассказано ниже.

Рисунок 6.3(c) показывает уже экспериментальные зависимости сигнала фарадеевского вращения, пропорционального ΔS, от частоты модуляции РЧ поля для разных мощностей оптической накачки в магнитном поле 4 мТл, наклоненном на угол $\theta = 12^\circ$ относительно нормали к образцу и $f_\mathrm{rf} = 80$ MHz, что соответствует $|g| = 1.4$. Всплеск на частоте 100 Гц в зависимостях соответствует аппаратному резонансу. Значения T_1 можно определить, аппроксимируя эти зависимости уравнением (6.19). Более того, далее будет рассмотрен способ еще более точного определения T_1 с учетом запаздывания сигнала спиновой поляризации относительно модуляции РЧ поля. Как и следовало ожидать, время T_1 лежит в миллисекундном диапазоне в согласии с результатами работ [7, A13]. Стоит отметить, что помимо создания спиновой поляризации и ее детектирования, лазерный луч также возмущает уже созданную спиновую поляризацию и укорачивает время T_1. Это хорошо иллюстрирует Рис. 6.3(d), который показывает скорость спиновой релаксации $1/T_1$, возрастающую с увеличением мощности лазера. Интересно, что данная зависимость близка к линейной, что позволяет экстраполировать $1/T_1$ к пределу $P = 0$ и определить $T_1 \approx 2$ мс для системы в отсутствии оптической накачки.

6.3.2 Динамика спиновой поляризации под воздействием РЧ поля и непрерывной оптической накачки

Для того чтобы определить время T_1 с точностью в несколько десятков процентов, достаточно, как уже было написано выше, определить частоту начала убывания кривой спиновой инерции, например, по уровню 1/2. Однако для более точного измерения T_1 необходима

модель, описывающая поведение спиновой поляризации в отсутствии и в присутствии РЧ поля. Для построения такой модели мы будем использовать уравнение Блоха, в которое введем непрерывную спиновую накачку P:

$$\frac{d\mathbf{S}}{dt} = (\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}} + \boldsymbol{\Omega}_{\mathrm{R}}(t)) \times \mathbf{S} - \hat{\gamma}\mathbf{S} + \mathbf{P}. \tag{6.1}$$

Однако здесь мы пренебрегаем термически равновесной спиновой поляризацией по сравнению с поляризацией, накачиваемой оптически. Как и прежде мы выбираем систему координат с осью x вдоль $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$ так, что $\mathbf{P}$ (лазерный луч) и $\mathbf{b}$ лежат в плоскости xz. Мы учитываем только поперечную составляющую РЧ-поля [точнее $\hat{g}\mathbf{b}(t)$] относительно $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$, которая затем раскладывается на две вращающиеся в противоположных направлениях круговые составляющие с частотами $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{rf}}$ и $-\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{rf}}$. В приближении вращающейся волны окончательно остается только компонента с частотой $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{rf}}$, направленная вдоль $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$, так как другая составляющая достаточно сильно отстоит от резонанса [164]. Можно показать, что накопленная спиновая поляризация в основном определяется продольной (относительно $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$) компонентой $\mathbf{P}$, а влияние поперечной составляющей имеет порядок $1/\omega_{\mathrm{L}}T_2 \ll 1$. Таким образом, для упрощения уравнений мы предполагаем, что $\mathbf{P} \parallel \boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$, подразумевая, что $\mathbf{P}$ – это компонента вектора оптической накачки вдоль $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$.

Уравнение (6.1) практически совпадает с уравнением (4.8). Здесь роль стационарной спиновой поляризации играет свободный член, отвечающий за оптическую накачку. Далее, как и прежде в главе 4, мы переходим во вращающуюся систему отсчета, в которой спиновая поляризация $\mathbf{S}'(t)$ дается выражением

$$\mathbf{S}'(t) = \mathbf{S}''(t) + \frac{PT_1}{1 + \Omega_{\mathrm{R}}^2 T_1 T_2 + \Delta\omega_{\mathrm{L}}^2 T_2^2} \begin{pmatrix} 1 + \Delta\omega_{\mathrm{L}}^2 T_2^2 \\ \Delta\omega_{\mathrm{L}}\Omega_{\mathrm{R}} T_2^2 \sin\varphi_{\mathrm{rf}} + \Omega_{\mathrm{R}} T_2 \cos\varphi_{\mathrm{rf}} \\ \Delta\omega_{\mathrm{L}}\Omega_{\mathrm{R}} T_2^2 \cos\varphi_{\mathrm{rf}} - \Omega_{\mathrm{R}} T_2 \sin\varphi_{\mathrm{rf}} \end{pmatrix}, \tag{6.2}$$

где $\mathbf{S}''(t)$ – решение однородного уравнения (4.14). Решение однородного уравнения в случае $T_1 \neq T_2$ обсуждалось в предыдущей главе в пределе $1/T_1, 1/T_2 \ll \Omega_{\mathrm{R}}$. Так как мы пока рассматриваем ту же физическую систему Ce^{3+}:YAG, мы можем использовать тот же предел. При этом решение однородного уравнения $\mathbf{S}''(t)$ представляет собой монотонно затухающую со временем τ_1 [уравнение (5.22)] компоненту спина вдоль вектора $\boldsymbol{\Omega} = \begin{pmatrix} \Delta\omega_{\mathrm{L}} \\ \Omega_{\mathrm{R}} \sin\varphi_{\mathrm{rf}} \\ \Omega_{\mathrm{R}} \cos\varphi_{\mathrm{rf}} \end{pmatrix}$ и перпендикулярную $\boldsymbol{\Omega}$ компоненту, вращающуюся с угловой скоростью $\boldsymbol{\Omega}$ и затухающую со

временем τ_2 [уравнение (5.22)]. Принимая во внимание, что $S_y(0) = S_z(0) = 0$ (поперечные компоненты спиновой поляризации дефазируют к моменту включения РЧ поля), переходя обратно к лабораторную систему отсчета, для продольной компоненты спиновой поляризации мы придем к выражению [A1]:

$$S_x(t) = \frac{PT_1}{1+\Omega_{\rm R}^2 T_1/\Delta\omega_{\rm L}^2 T_2}[1-\exp(-t/\tau_1)] + S_x(0)\frac{\Delta\omega_{\rm L}^2}{\Omega^2}\exp(-t/\tau_1) + S_x(0)\frac{\Omega_{\rm R}^2}{\Omega^2}\cos(\Omega t)\exp(-t/\tau_2). \quad (6.3)$$

В отсутствии же РЧ поля $\Omega_{\rm R} = 0$ и

$$S_x(t) = PT_1[1-\exp(-t/\tau_1)] + S_x(0)\exp(-t/\tau_1). \quad (6.4)$$

Множитель $\Delta\omega_{\rm L}^2/\Omega^2 = 1/(1+\Omega_{\rm R}^2/\Delta\omega_{\rm L}^2)$ во втором члене правой части уравнения (6.3) описывает быстрое (с масштабом времени $1/\Omega$) уменьшение спиновой поляризации сразу после включения РЧ поля. Таким образом, влияние РЧ поля зависит от того, насколько ларморовская частота удалена от частоты РЧ поля. Расстройка $\Delta\omega_{\rm L}$ может быть обусловлена двумя причинами: (i) разброс ларморовских частот в ансамбле электронных спинов из-за неоднородных статических внутренних магнитных полей или разброса g-факторов; (ii) временные флуктуации $\omega_{\rm L}$ для каждого электрона в меняющемся во времени окружении. В обоих случаях максимальное изменение $\Delta\omega_L$ можно оценить из полуширины на половине высоты пиков в спектрах ОДМР [Рис. 6.2(c)], $\Delta\omega_{\max} \sim 2\pi\times$ (6 МГц).

При дальнейших расчетах мы будем считать, что РЧ поле половину периода выключено, а вторую половину включено [Рис. 6.4(a)]. Таким образом, в первую половину периода модуляции РЧ поля спиновая динамика описывается уравнением (6.4), а во второй половине периода, когда РЧ поле включено, она описывается уравнением (6.3). Начальные условия для обоих уравнений можно найти из требования непрерывности $S_x(t)$ в моменты времени 0, $T_{\rm m}/2$ и $T_{\rm m}$ и периодичности.

6.3.3 Статические флуктуации ларморовской частоты

Для случая статических флуктуаций магнитного поля необходимо усреднить уравнения (6.4) и (6.3) по распределению $\Delta\omega_{\rm L}$ с центром в нуле и полушириной $\Delta\omega_{\max}$. Мы продемонстрируем результат этого усреднения для $T_1 = T_2$ в предположении лоренцевого распре-

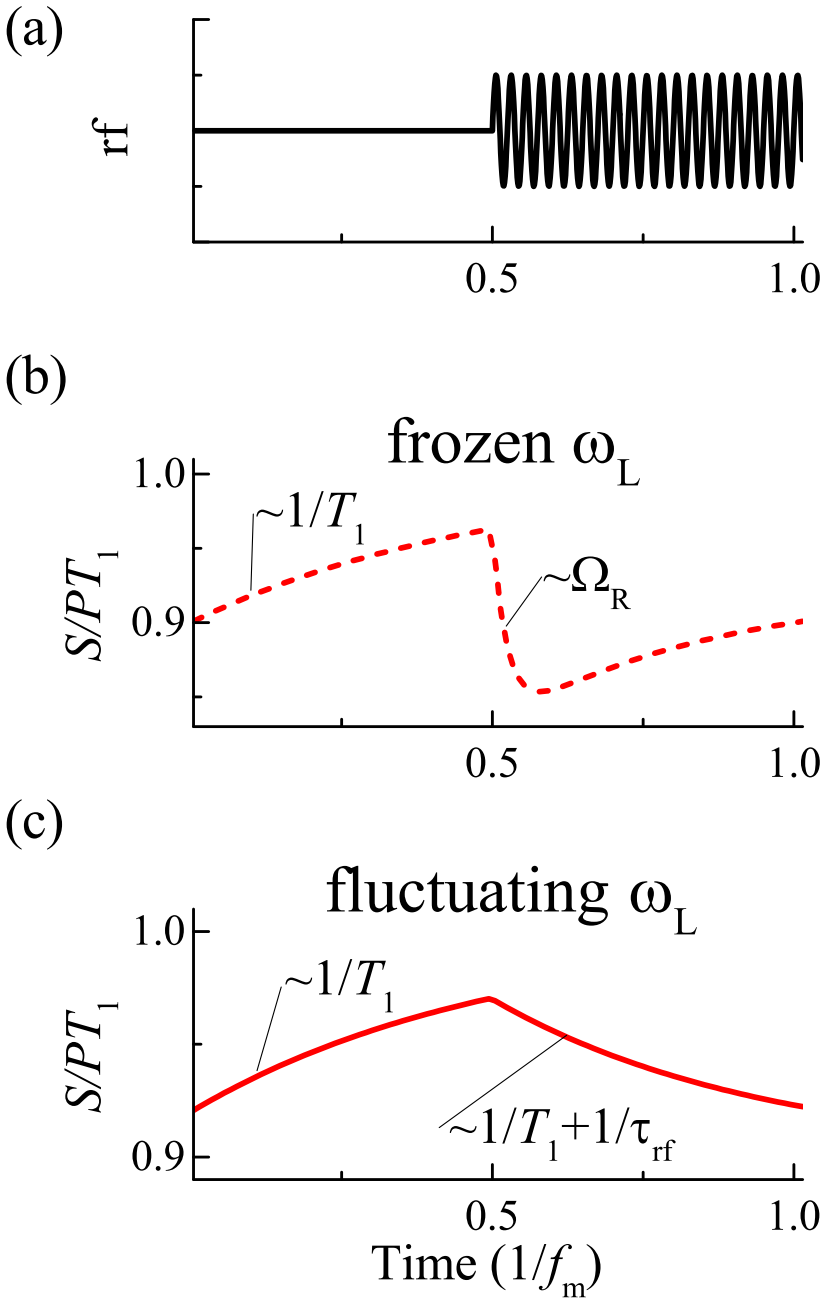


Рис. 6.4: Сравнение схематически-изображенного временного профиля спиновой динамики в течение периода модуляции РЧ поля для модели статических флуктуаций (b) и флуктуаций, меняющихся во времени (c). Панель (a) показывает временной профиль РЧ поля [A1].

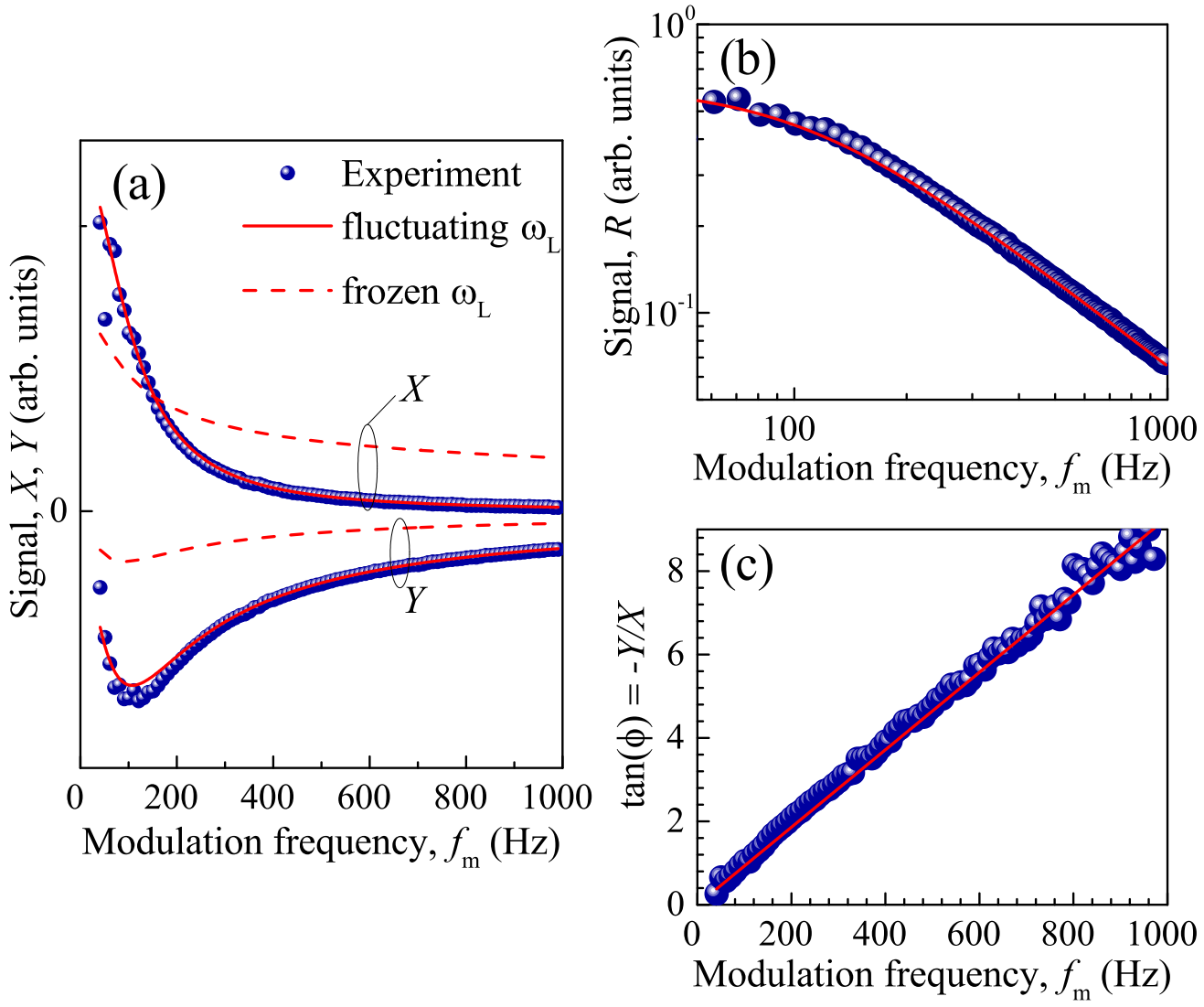


Рис. 6.5: (a) Частотная зависимость сигналов в каналах X и Y синхронного усилителя, соответствующих электронной спиновой динамике, свернутой с функциями синуса, $\sin(2\pi f_{\rm m}t)$, и косинуса, $\cos(2\pi f_{\rm m}t)$, соответственно. Пунктирные и сплошные линии показывают аппроксимацию экспериментальной зависимости расчетом в модели статических и меняющихся флуктуаций, соответственно. (b) Частотная зависимость полного сигнала $R = \sqrt{X^2 + Y^2}$. Сплошная линия показывает аппроксимацию формулой (6.19) в модели меняющихся флуктуаций. (c) Частотная зависимость отношения сигналов $-Y/X$. Сплошная линия показывает линейную аппроксимацию в соответствии с формулой (6.20) в модели меняющихся флуктуаций. (a)-(c) Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, $P = 1$ мВт, $B = 4$ мТл, $\theta = 12°$, $f_{\rm rf} = 80$ МГц, $U_{\rm rf} = 0.025$ В, $T = 5$ К [A1].

деление ларморовских частот: $\Delta\omega_{\max}/\pi(\omega_{\max}^2+\Delta\omega_{\mathrm{L}}^2)$. Усредненная спиновая динамика может быть представлена уравнением:

$$< S_x >_{\mathrm{ens}}(t) = PT_1 \times \begin{cases} 1-\beta\exp(-t/T_1), 0<t<T_{\mathrm{m}}/2 \\ 1-\alpha-(\beta-\alpha)\exp[(f_{\mathrm{m}}T_1)^{-1}-t/T_1]+f(t), T_{\mathrm{m}}/2<t<T_{\mathrm{m}}, \end{cases} \tag{6.5}$$

где функция $f(t)$ затухает со скоростью $\sim\Omega_{\mathrm{R}}\gg 1/T_1$ и для нас не очень важна, а

$$\alpha = \frac{\Omega_{\mathrm{R}}}{\Omega_{\mathrm{R}}+\Delta\omega_{\max}}, \tag{6.6}$$

$$\beta = \frac{\Omega_{\mathrm{R}}}{\Omega_{\mathrm{R}}+\Delta\omega_{\max}\sqrt{1-\exp[-(f_{\mathrm{m}}T_1)^{-1}]}}. \tag{6.7}$$

Схематически эта временная динамика показана Рис. 6.4(b). В первом полупериоде РЧ модуляции спиновая поляризация экспоненциально стремится к стационарному значению PT_1. Далее, включение РЧ-поля приводит к быстрому уменьшению спиновой поляризации, описываемому множителем $\Delta\omega_{\max}/(\Delta\omega_{\max}+\Omega_{\mathrm{R}})$. В течение второго полупериода приведенная спиновая поляризация стремится к уменьшенному стационарному значению за счет того же множителя.

В эксперименте реализована схема синхронного детектирования, и синхронный усилитель измеряет свертку спинового сигнала с $\sin(2\pi f_{\mathrm{m}}t)$ в канале X и $\cos(2\pi f_{\mathrm{m}}t)$ в канале Y. Результаты таких сверток для уравнения (6.5) задаются следующими уравнениями:

$$X = \frac{PT_1}{\pi}\alpha - \frac{2\pi PT_1^3 f_{\mathrm{m}}^2}{1+4\pi^2T_1^2f_{\mathrm{m}}^2}\left\{1+\exp[(2T_1f_{\mathrm{m}})^{-1}]\right\}\left\{\alpha-\beta(1-\exp[-(2T_1f_{\mathrm{m}})^{-1}])\right\}, \tag{6.8}$$

$$Y = -\frac{PT_1^2 f_{\mathrm{m}}}{1+4\pi^2T_1^2f_{\mathrm{m}}^2}\left\{1+\exp[(2T_1f_{\mathrm{m}})^{-1}]\right\}\left\{\alpha-\beta(1-\exp[-(2T_1f_{\mathrm{m}})^{-1}])\right\}. \tag{6.9}$$

Для $\Omega_{\mathrm{R}}\ll\Delta\omega_{\max}$, что имеет место в большинстве наших экспериментов, уравнения (6.8) и (6.9) сводятся к

$$X = \frac{PT_1}{\pi\Delta\omega_{\max}}\Omega_{\mathrm{R}}\Big[1-\frac{2\pi^2f_{\mathrm{m}}^2T_1^2}{1+4\pi^2T_1^2f_{\mathrm{m}}^2}\left\{1+\exp\left(\frac{1}{2T_1f_{\mathrm{m}}}\right)-\sqrt{\exp\left(\frac{1}{T_1f}\right)-1}\right\}\Big], \tag{6.10}$$

$$Y = -\frac{PT_1}{\Delta\omega_{\max}}\Omega_{\mathrm{R}}\frac{f_{\mathrm{m}}T_1}{1+4\pi^2T_1^2f_{\mathrm{m}}^2}\left\{1+\exp\left(\frac{1}{2T_1f_{\mathrm{m}}}\right)-\sqrt{\exp\left(\frac{1}{T_1f_{\mathrm{m}}}\right)-1}\right\}. \tag{6.11}$$

Экспериментальные зависимости сигналов в каналах X и Y синхронного усилителя по-

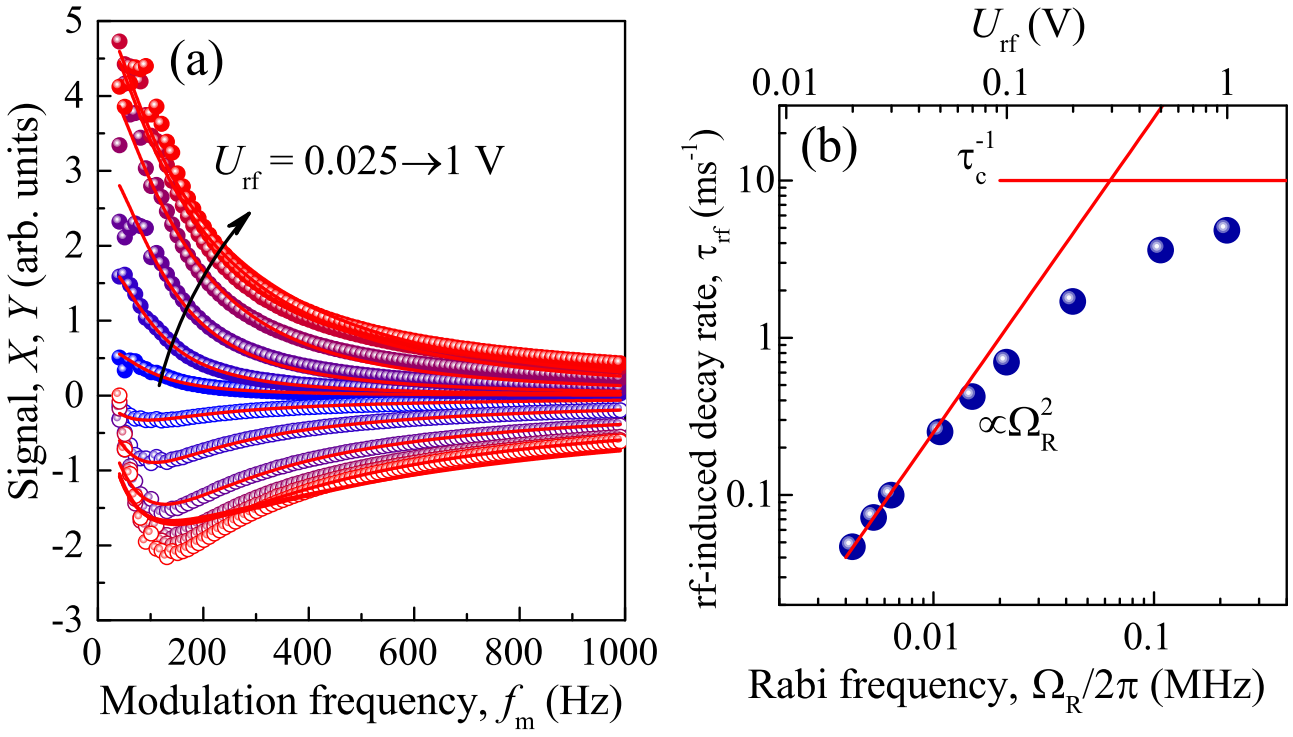


Рис. 6.6: (a) Частотные зависимости сигналов в каналах X и Y синхронного усилителя, соответствующих электронной спиновой динамике, свернутой с функциями синуса, $\sin(2\pi f_m t)$, (положительный сигнал) и косинуса, $\cos(2\pi f_m t)$, (отрицательный сигнал) соответственно, при различных частотах Раби, задаваемых амплитудой напряжения на РЧ катушке U_{rf}. Сплошные линии показывают аппроксимации экспериментальных зависимостей расчетом в модели меняющихся флуктуаций. (b) Зависимость скорости затухания спиновой поляризации, индуцированного РЧ полем, от частоты Раби (нижняя шкала), задаваемой напряжением на РЧ катушке (верхняя шкала). Сплошные линии показывают квадратичную зависимость и константу. (a),(b) Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, $P = 1$ мВт, $B = 4$ мТл, $\theta = 12°$, $f_{rf} = 80$ МГц, $T = 5$ К [A1].

казаны на Рис. 6.5(a). Подгонка зависимостей на основе данной модели статических флуктуаций ω_L с использованием уравнений (6.10),(6.11) показана пунктирными линиями на Рис. 6.5(a). Можно видеть, что расчет далек от экспериментальных зависимостей. Также было проверено, что при не равных T_1 и T_2, которые, тем не менее, все еще велики по сравнению с $1/\Omega_R$, ситуация не слишком улучшается.

6.3.4 Флуктуации ларморовской частоты, меняющиеся во времени

Далее мы рассмотрим временные флуктуации ω_L, которые могут возникать из-за сверхтонкого взаимодействия с флуктуирующей ядерной подсистемой. Здесь помимо амплитуды флуктуаций ларморовской частоты необходимо ввести время корреляции τ_c этих флуктуаций так, что ларморовская частота изменится на $\sim \Delta\omega_{max}$ за период времени $t \sim \tau_c$. Оценим

изменение S_x за время τ_c. Предположим, что $\Omega_R \ll \Delta\omega_{max}$. Из уравнения (6.3) видно, что РЧ поле почти не влияет на спиновую поляризацию, когда $|\Delta\omega_L| \sim \Delta\omega_{max}$. Однако когда $\Delta\omega_L$ приближается к 0 и становится сравнимо с Ω_R, S_x уменьшается со скоростью, определяемой последним членом уравнения (6.3). Из него видно, что чем меньше $\Delta\omega_L$, тем больше изменение S_x (Ω_R^2/Ω^2), но тем дольше время, необходимое для этого изменения $(1/\Omega)$. Оценим изменение спиновой поляризации за время τ_c. Интервал времени, в течение которого $\Delta\omega_L$ находится вблизи 0, а вернее в неком небольшом интервале $|\Delta\omega_L| \lesssim \Omega_0$, можно оценить как $\Delta t \sim \tau_c\Omega_0/\Delta\omega_{max}$. Найдем величину Ω_0, для которой это время достаточно велико, $\Delta t \sim 1/\Omega_0$, так что последнее слагаемое в уравнении (6.3) меняется от максимального значения до нуля: $\Omega_0^2 \sim \Delta\omega_{max}/\tau_c$. Изменение спиновой поляризации за время τ_c можно оценить как $\Delta S_x/S_x \sim -\Omega_R^2/\Omega_0^2 \sim -\tau_c\Omega_R^2/\Delta\omega_{max}$. Таким образом, уменьшение спиновой поляризации за счет воздействия РЧ поля $dS_x/dt \approx \Delta S_x/\tau_c \sim -(\Omega_R^2/\Delta\omega_{max})S_x$ является экспоненциальным и может быть описано временем $\tau_{rf} = \Delta\omega_{max}/\Omega_R^2$. Можно заметить, что если $\Omega_R^2 \gtrsim \Delta\omega_{max}/\tau_c$, то относительное изменение спиновой поляризации составляет около 1, а $\tau_{rf} \sim \tau_c$. Таким образом, динамика спиновой поляризации, усредненная по многим периодам РЧ-модуляции для флуктуирующей во времени ларморовской частоты может быть описана уравнением

$$< S_x >_{time} (t) \approx S_x(0)\exp(-t/T_1 - t/\tau_{rf}) + \frac{P}{1/T_1 + 1/\tau_{rf}}[1 - \exp(-t/T_1 - t/\tau_{rf})], \qquad (6.12)$$

где

$$\tau_{rf}^{-1} \sim \begin{cases} \Omega_R^2/\Delta\omega_{max}, \Omega_R^2 \ll \Delta\omega_{max}/\tau_c; \\ \tau_c^{-1}, \Omega_R^2 \gtrsim \Delta\omega_{max}/\tau_c. \end{cases} \qquad (6.13)$$

Таким образом, приложение РЧ поля модулирует скорость релаксации. Временной профиль усредненной спиновой поляризации для данной модели показан на Рис. 6.4(c) и задается уравнениями

$$< S_x >_{time} (t) = PT_1 - \frac{PT_1}{1 + \tau_{rf}/T_1}\frac{1 - \exp[-(2f_mT_1)^{-1} - (2f_m\tau_{rf})^{-1}]}{1 - \exp[-(f_mT_1)^{-1} - (2f_m\tau_{rf})^{-1}]}\exp(-t/T_1), 0 < t < T_m/2,$$

$$< S_x >_{\text{time}}(t) = \frac{P}{\tau_{\text{rf}}^{-1} + T_1^{-1}} + \frac{PT_1}{1 + \tau_{\text{rf}}/T_1} \times \frac{\exp[(2f_{\text{m}}T_1)^{-1} + (2f_{\text{m}}\tau_{\text{rf}})^{-1}] - \exp[(2f_{\text{m}}\tau_{\text{rf}})^{-1}]}{1 - \exp[-(f_{\text{m}}T_1)^{-1} - (2f_{\text{m}}\tau_{\text{rf}})^{-1}]} \times \exp(-t/T_1 - t/\tau_{\text{rf}}), T_{\text{m}}/2 < t < T_{\text{m}}. \quad (6.14)$$

В первом полупериоде спиновая поляризация стремится к стационарному значению PT_1 со скоростью $1/T_1$, а во втором полупериоде спиновая поляризация уменьшается и стремится к стационарному значению $P/(T_1^{-1} + \tau_{\text{rf}}^{-1})$ со скоростью $1/T_1 + 1/\tau_{\text{rf}}$. Свертка этого временного профиля спина с $\sin(2\pi f_{\text{m}}t)$ и $\cos(2\pi f_{\text{m}}t)$ дает сигналы, измеренные в X и Y каналах синхронного усилителя, соответственно, которые задаются уравнениями

$$X = \frac{1}{\pi}\frac{PT_1^2}{T_1 + \tau_{\text{rf}}}\Big\{1 - 2\pi^2 f_{\text{m}}^2\left[\frac{1}{T_1^{-2} + 4\pi^2 f_{\text{m}}^2} + \frac{1}{(T_1^{-1} + \tau_{\text{rf}}^{-1})^2 + 4\pi^2 f_{\text{m}}^2}\right] - 2\pi^2 f_{\text{m}}^2 \frac{1 - \exp[-(2f_{\text{m}}\tau_{\text{rf}})^{-1}]}{\exp[(2f_{\text{m}}T_1)^{-1}] - \exp[-(2f_{\text{m}}T_1)^{-1} - (2f_{\text{m}}\tau_{\text{rf}})^{-1}]} \times \left[\frac{1}{T_1^{-2} + 4\pi^2 f_{\text{m}}^2} - \frac{1}{(T_1^{-1} + \tau_{\text{rf}}^{-1})^2 + 4\pi^2 f_{\text{m}}^2}\right]\Big\}; \quad (6.15)$$

$$Y = -\frac{PT_1^2 f_{\text{m}}}{T_1 + \tau_{\text{rf}}}\Big\{\frac{T_1^{-1}}{T_1^{-2} + 4\pi^2 f_{\text{m}}^2} + \frac{T_1^{-1} + \tau_{\text{rf}}^{-1}}{(T_1^{-1} + \tau_{\text{rf}}^{-1})^2 + 4\pi^2 f_{\text{m}}^2} + \frac{1 - \exp[-(2f_{\text{m}}\tau_{\text{rf}})^{-1}]}{\exp[(2f_{\text{m}}T_1)^{-1}] - \exp[-(2f_{\text{m}}T_1)^{-1} - (2f_{\text{m}}\tau_{\text{rf}})^{-1}]} \times \left[\frac{T_1^{-1}}{T_1^{-2} + 4\pi^2 f_{\text{m}}^2} - \frac{T_1^{-1} + \tau_{\text{rf}}^{-1}}{(T_1^{-1} + \tau_{\text{rf}}^{-1})^2 + 4\pi^2 f_{\text{m}}^2}\right]\Big\}. \quad (6.16)$$

Интересно, что для малой скорости релаксации, индуцированной РЧ полем, $\tau_{\text{rf}}^{-1} \ll T_1^{-1}$ ($\Omega_{\text{R}}^2 \ll \Delta\omega_{\max}/T_1$), что имеет место в большинстве наших экспериментов, уравнения (6.15),(6.16) сводятся к

$$X \approx \frac{PT_1^2}{\pi\Delta\omega_{\max}}\Omega_{\text{R}}^2 \frac{1}{1 + 4\pi^2 T_1^2 f_{\text{m}}^2}, \quad (6.17)$$

$$Y \approx -\frac{PT_1^2}{\pi\Delta\omega_{\max}}\Omega_{\text{R}}^2 \frac{2\pi T_1 f_{\text{m}}}{1 + 4\pi^2 T_1^2 f_{\text{m}}^2} \quad (6.18)$$

Эти уравнения дают хорошее согласие с экспериментальными данными, что показано на Рис. 6.5(a) красными сплошными линиями. Можно также показать, что данные уравнения справедливы и для синусоидальной модуляции РЧ поля. Полная величина сигнала фарадеевского вращения (спиновая поляризация), показанная, например, на Рис. 6.3(c), пропорци-

ональна $R = \sqrt{X^2 + Y^2}$:

$$\Delta S \approx \frac{PT_1^2}{\pi \Delta\omega_{\max}} \Omega_{\mathrm{R}}^2 \frac{1}{\sqrt{1 + 4\pi^2 T_1^2 f_{\mathrm{m}}^2}}. \tag{6.19}$$

Это уравнение практически совпадает с классическим уравнением спиновой инерции (1.11) [141, 142, 77] за исключением префактора. Рисунок 6.5(b) показывает частотную зависимость полного сигнала, соответствующего X и Y на Рис. 6.5(a) вместе с подгонкой уравнением (6.19).

Отметим, что ненулевой сигнал в канале Y и, в частности, его возрастание по отношению к сигналу в канале X, связано с запаздыванием спиновой модуляции по отношению к РЧ модуляции. Это и есть суть эффекта спиновой инерции. Это запаздывание может быть описано фазой ϕ так, что

$$\tan\phi = -\frac{Y}{X} = 2\pi f_{\mathrm{m}} T_1. \tag{6.20}$$

Это соотношение, в принципе, само по себе может быть использовано для определения T_1. Действительно, Рис. 6.5(c) показывает отношение сигналов в каналах Y и X, которое близко к линейной зависимости, наклон которой позволяет определить T_1. Отметим, что это уравнение совпадает с уравнением (1.12), полученным для классической спиновой инерции, где модулируется поляризация оптической накачки.

Поскольку в экспериментах можно измерять сигналы в каналах X и Y отдельно, мы в дальнейшем будем использовать данные из обоих каналов для их подгонки уравнениями (6.17) и (6.18). Это, как и ожидается, обеспечивает лучшую точность определения T_1, чем уравнение (6.19), используемое для подгонки только одного набора данных.

На Рис. 6.5 приведены данные для малого значения частоты Раби Ω_{R}, которое, как мы помним, задается амплитудой напряжения на РЧ катушке U_{rf} (см. раздел 4.2), где еще нужно учесть угол РЧ поля по отношению к $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$. Таким образом, здесь справедливы уравнения (6.17) и (6.18). Однако можно использовать более общие уравнения (6.15) и (6.16) для подгонки данных с большими значениями частоты Раби [Рис. 6.6(a)] и определения T_1 вместе с τ_{rf}. Естественно, T_1 было общим параметром для кривых отличающихся лишь частотами Раби. Таким образом, можно построить зависимость τ_{rf}^{-1} от Ω_{R} или U_{rf} [Рис. 6.6(b)]. Интересно, что результат хорошо согласуется с оценками из уравнения (6.13): при малых амплитудах РЧ-поля τ_{rf}^{-1} квадратично по Ω_{R}, а затем выходит на уровень τ_{c}^{-1}. Из этой зависимости можно оценить $\tau_{\mathrm{c}} \sim 0.1$ мс.

Отметим, что модель, представленная в этом разделе, далека от того чтобы быть точной. В частности, мы пренебрегаем поперечными флуктуациями $\boldsymbol{\omega}_{\mathrm{L}}$ в плоскости yz. Тем не менее, эта модель иллюстрирует разницу между статическими и меняющимися флуктуаци-

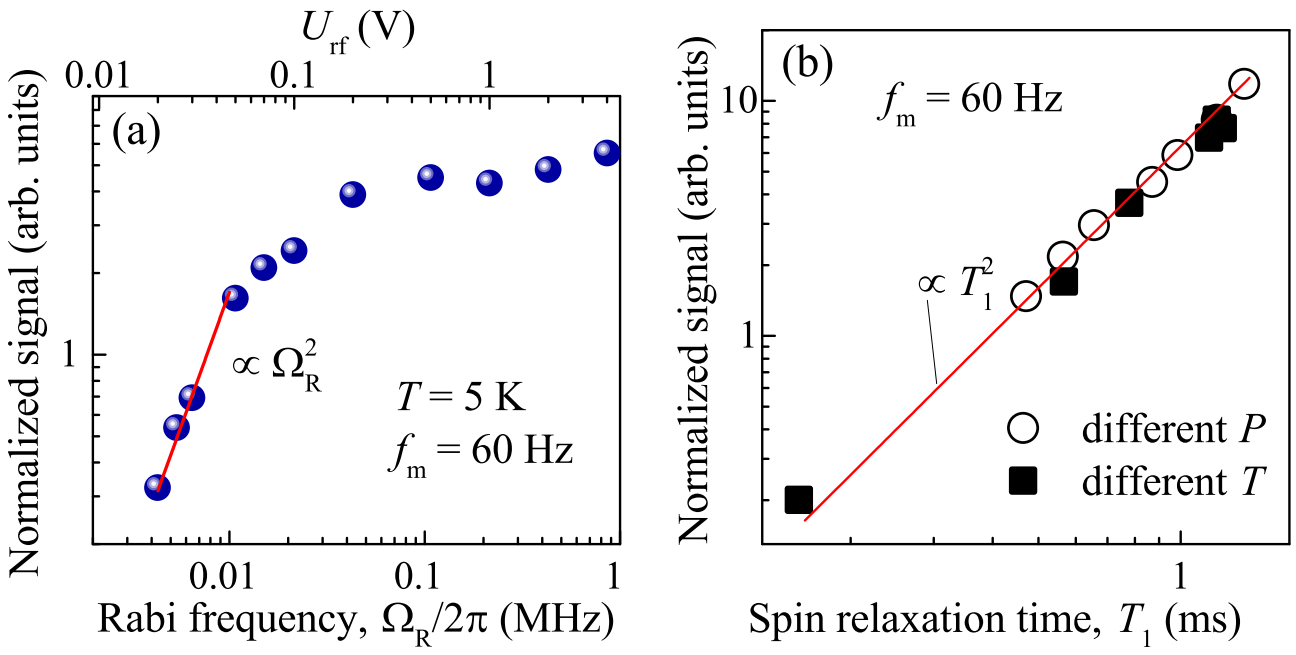


Рис. 6.7: (a) Сигнал фарадеевского вращения, нормированный на P, как функция частоты Раби или амплитуды напряжения на РЧ катушке $U_{\rm rf}$ (верхняя шкала). Мощность лазера $P = 1$ мВт, температура $T = 5$ K. (b) Сигнал фарадеевского вращения, нормированный на P, как функция времени T_1. Время T_1 изменялось за счет измерения P при $T = 5$ K [Рис. 6.3(c)], открытые кружки, и за счет изменения T [Рис. 6.9(b)], полные квадраты. (a),(b) Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, $f_{\rm m} = 60$ Гц, $f_{\rm rf} = 80$ МГц, $B = 4$ мТл, $\theta = 12°$ [A1].

ями частоты Раби. Она также дает аналитические выражения, которые хорошо согласуются с экспериментальными данными и позволяют определить T_1.

6.3.5 Сравнение двух моделей

Выше мы показали, что РЧ поле по-разному действует на спиновый ансамбль в зависимости от того постоянны ли ларморовские частоты отдельных электронов, или они изменяются за время меньшее, чем T_1. В первом случае РЧ поле вызывает быстрое затухание поляризации (со скоростью $\sim \Omega_{\rm R}$) для подансамбля спинов, ларморовские частоты которых достаточно близки к частоте РЧ поля. Во втором случае РЧ поле более плавно меняет спиновую поляризацию, так как оно вносит дополнительный вклад в скорость релаксации всех спинов. Справедливость первого или второго подхода для конкретной физической системы можно сформулировать следующим образом. Модель переменных во времени флуктуаций справедлива, если время корреляции флуктуаций много меньше, чем T_1, $\tau_{\rm c} \ll T_1$, а разброс этих меняющихся флуктуаций много больше частоты Раби, $\Delta\omega_{\rm max} \gg \Omega_{\rm R}$. Отметим, что $\Delta\omega_{\rm max}$ может быть меньше ширины спинового резонанса. Этого следует ожидать, если

в ширину резонанса дают вклад как статические флуктуации, например, из-за расброса g факторов, так и меняющиеся со временем, например, за счет флуктуирующего ядерного поля. Если хотя бы один из вышеуказанных критериев не выполняется, следует использовать метод статических флуктуаций.

Свойства спиновой системы в зависимости от применимости к ней модели статических или меняющихся флуктуаций также по-разному проявляются в эксперименте. Помимо количественных различий, которые проявляются в степени совпадения соответствующих теоретических подгонок и экспериментальных данных [Рис. 6.5(a)], между двумя моделями существуют и качественные различия. Во-первых, при малых Ω_{R} сигнал является линейным по Ω_{R} в случае статических флуктуаций [уравнения (6.10),(6.11)] и является квадратичным по Ω_{R} в случае изменяющихся во времени флуктуаций [уравнение (6.19)]. Экспериментальная зависимость сигнала от частоты Раби Ω_{R}, которая задается напряжением U_{rf}, для рассматриваемой здесь системы Ce^{3+}:YAG квадратична при малых Ω_{R} [Рис. 6.7(a)]. Второе качественное отличие результатов, которые дают две модели, состоит в том, что для низких частот модуляции сигнал линеен по T_1 в случае замороженных флуктуаций [уравнения (6.10),(6.11)] и квадратичен по T_1 в случае изменяющихся во времени флуктуаций [уравнение (6.19)]. На Рис. 6.7(b) показан сигнал фарадеевского вращения, нормированный на мощность лазера (то есть исходный сигнал с балансного детектора, нормированный на P^2) измеренный на низкой частоте модуляции $f_{\mathrm{m}} = 60$ Гц в зависимости от времени T_1, которое было определено в модели меняющихся флуктуаций. Открытые и закрашенные символы соответствуют изменению T_1 за счет изменения мощности лазера и температуры, соответственно. Увеличение как мощности, так и температуры приводит к уменьшению T_1 (Рис. 6.3 и 6.9). Зависимость на Рис. 6.7(b) также квадратичная, что также говорит в пользу применимости модели изменяющихся во времени флуктуаций. Отметим, что существование флуктуаций ядерных магнитных полей на временах короче T_1 также следует из кривой восстановления поляризации для Ce^{3+}:YAG [A13], где спиновая поляризация при нулевом внешнем поле почти полностью исчезает. Между тем, в случае замороженных ядерных флуктуаций спиновая поляризация при $B = 0$ должна падать до $1/3$ от своего значения в сильных магнитных полях [21].

6.3.6 Сравнение с “классической” спиновой инерцией

Интересно сравнить метод резонансной спиновой инерции, где модулируется РЧ поле, воздействующее на спиновую систему со стандартным методом спиновой инерции [141], где модулируется поляризация луча накачки. Стандартный метод подробно описан в разделе 1.9.

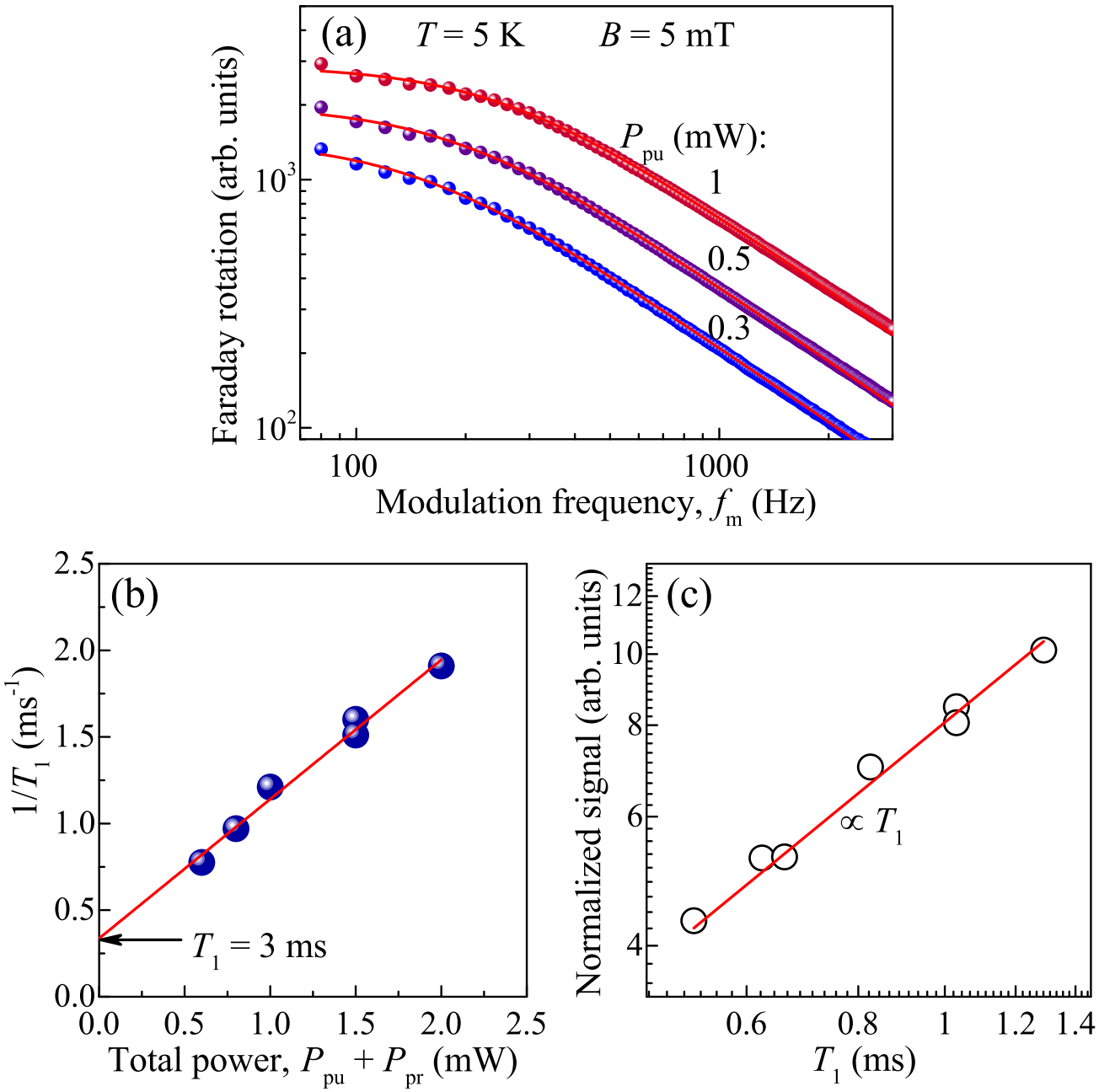


Рис. 6.8: (a) Зависимости сигнала фарадеевского вращения от частоты модуляции поляризации луча накачки (кривые спиновой инерции) для различных мощностей луча накачки. Красные линии показывают аппроксимацию экспериментальных зависимостей формулой (1.11). (b) Скорость продольной спиновой релаксации $1/T_1$, извлеченная из кривых спиновой инерции, в зависимости от суммарной мощности луча накачки и луча зондирования. Красная линия показывает линейную аппроксимацию, которая используется для экстраполяции зависимости в $P = 0$ и определения времени T_1, соответствующего "невозмущенной" системе. (c) Зависимость сигнала фарадеевского вращения, нормированного на мощность луча накачки (то есть сигнала непосредственно с детектора, нормированного на $P_{\rm pu}P_{\rm pr}$) от времени T_1, которое менялось за счет изменения мощностей лучей накачки и зондирования при частоте модуляции $f_{\rm m} = 60$ Гц. (a)-(c) Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, $B = 5$ мТл, $\theta = 45°$, $T = 5$ К.

Рисунок 6.8(a) показывает результаты измерений в той же системе Ce^{3+}:YAG в стандартной двулучевой схеме где регистрируется амплитуда фарадеевского вращения луча зондирования в зависимости от частоты модуляции (от σ^- к σ^+) луча накачки при фиксированной задержке между импульсами накачки и зондирования. Зависимости показаны для различных мощностей луча накачки. Уравнение (1.11) хорошо описывает экспериментальные данные [красные линии на Рис. 6.8(a)], позволяя определить время T_1. Зависимость скорости релаксации $1/T_1$ от суммарной мощности луча накачки и луча зондирования приведена на Рис. 6.8(b), позволяя определить время T_1 для невозмущенной системы. Оно оказывается сравнимым со временем, измеренным методом резонансной спиновой инерции. Однако, как мы уже знаем, это время, измеренное чисто оптически, является усредненным по различным ориентациям g тензора, то есть по резонансам с различными g факторами. Интересно отметить, что увеличение мощности луча зондирования приводит к такому же уменьшению времени T_1, что и увеличение мощности луча накачки. Это полностью согласуется с наблюдением на Рис. 5.18 из предыдущей главы, который показывает что время спиновой релаксации (в том случае T_2) зависит от полной мощности лазерного излучения, но не от его поляризации. По этой причине на Рис. 6.8(b) по оси абцисс отложена их суммарная мощность.

Уравнение для амплитуды спиновой модуляции (1.11) при модуляции поляризации накачки отличается от соответствующего уравнения (6.19) при модуляции РЧ поля лишь префактором. Важным различием в префакторах этих уравнений является то, что в методе резонансной спиновой инерции амплитуда пропорциональна T_1^2, в чем мы убедились на Рис. 6.7(b), а в оптическом методе спиновой инерции она пропорциональна T_1, что действительно наблюдается в эксперименте [Рис. 6.8(c)].

6.4 Продольная спиновая релаксация в Ce^{3+}:YAG, анизотропия T_1

Итак, мы разобрали основы метода резонансной спиновой инерции и показали, что в Ce^{3+}:YAG имеют место достаточно сильные флуктуации во времени ларморовской частоты спина электрона, которые определяют особенности воздействия РЧ поля на электронную спиновую динамику. В данном случае РЧ поле приводит к дополнительному затуханию спиновой поляризации и кривая спиновой инерции (для небольшой амплитуды РЧ поля) описывается уравнением (6.19), тогда как сигналы отдельно в каналах X и Y синхронного усилителя описываются уравнениями (6.17) и (6.18), соответственно. Таким образом, можно

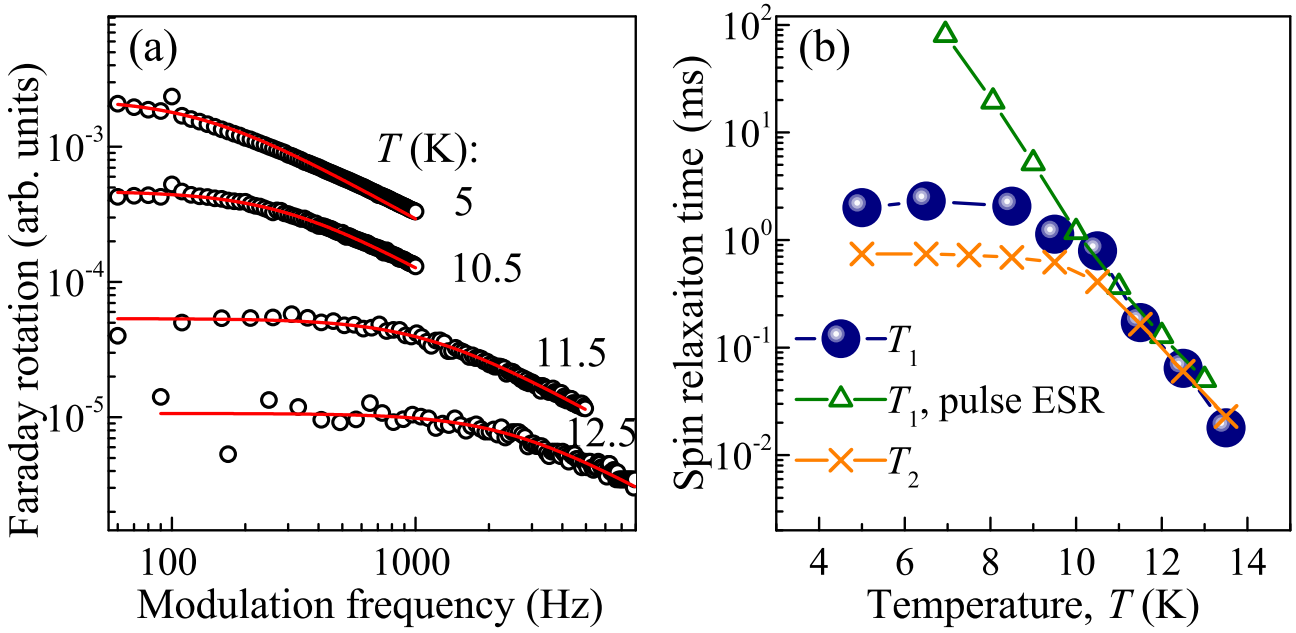


Рис. 6.9: (a) Зависимости сигнала фарадеевского вращения от частоты модуляции РЧ поля (кривые спиновой инерции) при различных температурах. Красные линии показывают аппроксимацию экспериментальных зависимостей формулой (6.19). $B = 4$ мТл, $\theta = 12°$, $f_{\rm rf} = 80$ МГц. (b) Температурная зависимость времени продольной спиновой релаксации T_1, измеренного здесь методом резонансной спиновой инерции (шарики), времени T_1, измеренного в поле 474 мТл методом импульсного ЭПР в работе [A13], и времени T_2, измеренного в Фогтовском поле 3.3 мТл методом стимулированного РСУ (см. главу 5). Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. % [A1].

перейти к применению данного метода для исследования спиновых свойств рассматриваемой системы.

Рисунок 6.9 показывает зависимость кривых спиновой инерции и времени T_1 от температуры. Увеличение температуры от 5 до 13 K ожидаемо приводит к уменьшению T_1. Это проявляется в расширении частотного диапазона, в котором сигнал постоянен, на кривых спиновой инерции [Рис. 6.9(a)]. На Рис. 6.9(b) показано сравнение измеренной температурной зависимости T_1 с температурной зависимостью T_1, измеренной методом импульсного ЭПР в работе [A13] и с температурной зависимостью T_2, измеренной методом стимулированного РСУ, о чем было рассказано в предыдущей главе [A2]. Отметим, что в методе импульсного ЭПР наблюдаются две компоненты продольной спиновой релаксации, тогда как здесь мы показываем время только для более медленной компоненты [треугольники на Рис. 6.9(b)]. При $T > 10$ K все зависимости имеют одинаковое поведение, которое описывается взаимодействием с фононами, в соответствии с уравнением (5.17). При понижении температуры измеренные здесь T_1 и T_2 насыщаются, тогда как время T_1 измеренное методом импульсного ЭПР продолжает увеличиваться. Такое различие в поведении может быть связано с большим различием в магнитных полях при которых проводились эти измерения: $B = 474$ мТл для импульсного ЭПР и несколько мТл в нашем случае. Действительно, внешнее магнитное поле может значительно подавлять влияние флуктуирующих ядерных полей на релаксацию спина электрона [21]. Таким образом, по-видимому, при малых полях и при малых температурах продольная релаксация электронной спиновой подсистемы происходит с участием ядерной спиновой подсистемы.

Интересно исследовать зависимость времени T_1 от магнитного поля более подробно. На Рис. 6.10(a) приведены соответствующие зависимости для фиксированного угла магнитного поля по отношению к нормали $\theta = 20°$ и трех различных g факторов. Время T_1 увеличивается пока B растет до 3 мТл, а затем увеличение замедляется. Значения T_1 при $B \gtrsim 3$ мТл различны для разных g-факторов. Можно предположить, что T_1 увеличивается с увеличением g, но на самом деле ситуация намного сложнее. Мы можем исследовать анизотропию T_1, варьируя угол магнитного поля θ и частоту f_{rf} и следуя угловым зависимостям спинового резонанса, показанным на Рис. 6.2(d). Значения T_1 вдоль этих зависимостей показаны размерами пузырьков на Рис. 6.10(b). Из этого рисунка следует, что нет однозначного соответствия между T_1 и g-фактором, а T_1 сильно зависит от ориентации магнитного поля и может изменяться более чем в 2 раза при изменении θ. Такая сильная анизотропия T_1 предположительно связана с тем, что в условиях слабых магнитных полей и низких температур T_1 не зависит от температуры и определяется электронно-ядерным спиновым взаимодействием,

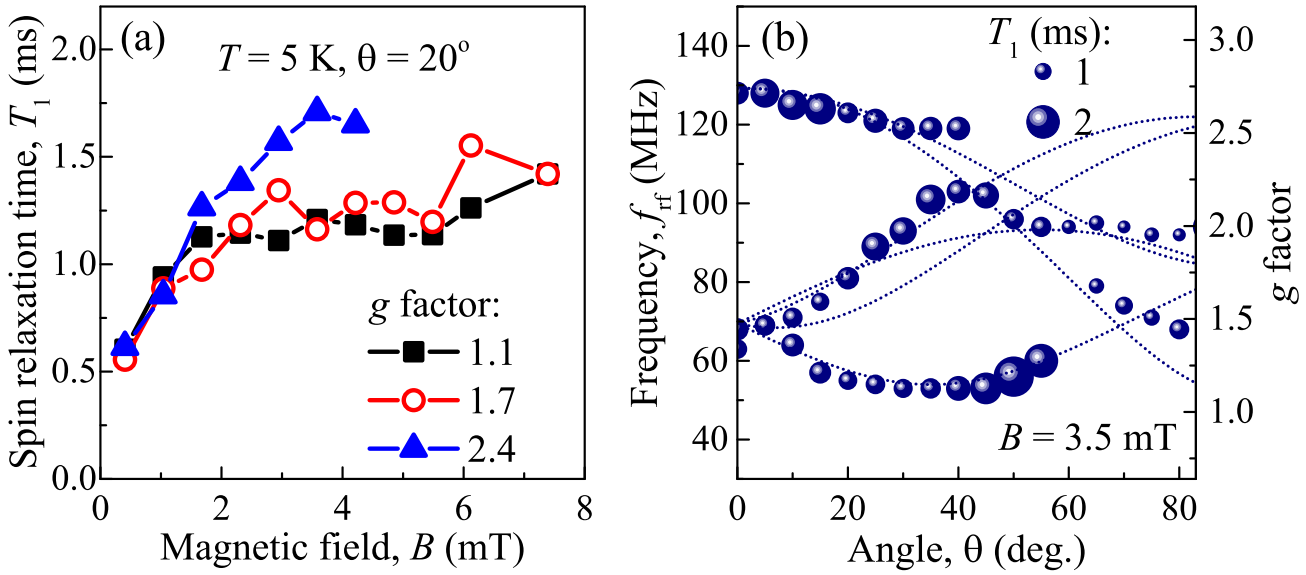


Рис. 6.10: (a) Зависимости времени продольной спиновой релаксации T_1 от магнитного для трех различных g факторов. $\theta = 20°$. (b) Зависимость времени T_1, которое отображается размером пузырьков от угла магнитного поля θ относительно нормали к образцу и частоты РЧ поля f_{rf}. На левой оси показаны значения g фактора. Пунктирные линии показывают расчет анизотропии g фактора в соответствии с уравнением (5.10). $B = 3.5$ мТл. (a),(b) Образец Ce^{3+}:YAG с концентрацией Ce 0.5 ат. %, $P = 0.5$ мВт, $T = 5$ K. [A1].

имеющим анизотропную природу.

6.5 Заключение по данной главе

В данной главе был описан метод резонансной спиновой инерции, позволяющий определять время продольной спиновой релаксации T_1 селективно для определенной спиновой моды, то есть для определенного g фактора. Метод основан на создании большой спиновой поляризации оптически, ее детектировании тем же оптическим лучом и резонансном воздействии на спиновую поляризацию РЧ полем, которое приводит к ее уменьшению. Модуляция амплитуды РЧ поля позволяет наблюдать модуляцию спиновой поляризации, амплитуда которой зависит от соотношения периода модуляции и T_1. Таким образом, зависимость амплитуды модуляции спиновой поляризации от частоты модуляции позволяет определить T_1. Также в данной главе показано, что характер динамики спинового ансамбля под воздействием РЧ поля зависит от того, являются ли частоты спиновой прецессии ансамбля статическими или флуктуируют за время короче T_1 с амплитудой больше частоты Раби, задаваемой РЧ полем. При этом метод резонансной спиновой инерции позволяет определить характер данных флуктуаций.

Данный метод применен к ансамблю ионов церия в решетке YAG, где измерено время T_1 селективно для отдельных частот, присутствующих в спектре магнитного резонанса и связанных с шестью различными ориентациями g тензора электрона для ионов, находящихся в магнитно неэквивалентных узлах решетки YAG. Измерена температурная зависимость T_1 и обнаружено, что при в малых магнитных полях и низких температурах T_1 слабо зависит от температуры и, по-видимому, определяется взаимодействием спина электрона с ядерной спиновой подсистемой. В этих же условиях обнаружена сильная анизотропия времени T_1, которое не определяется однозначно абсолютной величиной g фактора и магнитного поля, но сильно зависит от ориентации магнитного поля по отношению к осям решетки.

Заключение

В данной диссертации рассмотрен ряд вопросов, относящихся к методам измерения спиновой динамики, а также к спиновой релаксации в объемном n-легированном GaAs, квантовых ямах и квантовых точках на основе GaAs, а также редкоземельных ионах в твердотельной матрице. Были разработаны оригинальные методы спектроскопии долгоживущей спиновой динамики, позволяющие определить ее основные параметры: частоту ларморовской прецессии ω_{L}, время продольной спиновой релаксации T_1, время дефазировки спинового ансамбля T_2^* и время спиновой когерентности T_2. С помощью данных методов обнаружено проявления транспортных эффектов, связанных с движением электронов, в спиновой динамике, исследован эффект синхронизации спиновых мод в квантовых точках, в Ce^{3+}:YAG измерено рекордно длинное время T_2 свободное от влияния неоднородного окружения и измерена анизотропия времени T_1. Сформулируем основные результаты данной диссертации:

1. Разработан расширенный метод накачки–зондирования с измерением фарадеевского/керровского вращения, позволяющий регистрировать спиновую динамику в практически неограниченном временном диапазоне с пикосекундным разрешением и измерять частоту Лармора, время продольной спиновой релаксации T_1 и время дефазировки спинового ансамбля T_2^*.

2. Экспериментально установлено радикальное изменение характера спиновой динамики в магнитном поле в n-GaAs при делокализации электронов за счет увеличения концентрации доноров или увеличения температуры. В фазе изолятора спиновая система локализованных электронов характеризуется большой неоднородностью частот ларморовской прецессии, коротким временем дефазировки спинового ансамбля T_2^* и длинным временем $T_1 \gg T_2^*$. Для свободных электронов разброс частот прецессии минимален, и система характеризуется близкими и не очень длинными временами $T_1 \sim T_2^*$. В поле около 1 Тл при низкой температуре для n-GaAs в фазе изолятора $T_2^* \sim 1$ нс, $T_1 \sim 10$ мкс, тогда как в металлической фазе $T_1 \sim T_2^* \sim 100$ нс.

3. В n-GaAs с концентрацией доноров ниже перехода металл–изолятор обнаружена связь межу временем продольной спиновой релаксации T_1 и временем неоднородной дефазировки спинового ансамбля T_2^*, которую можно выразить соотношением $T_1 T_2^* \approx const$. Данное соотношение выполняется при изменении магнитного поля и температуры, когда сами времена T_1 и T_2^* меняются на несколько порядков.

4. Обнаружено проявление эффекта слабой локализации электронов, связанного с квантовой интерференцией электронных траекторий, в оптически-детектируемой спиновой динамике в n-GaAs, находящемся в металлической фазе вблизи перехода металл–изолятор. Эффект слабой локализации проявляется в увеличении времени продольной спиновой релаксации T_1 на несколько десятков процентов. Этот эффект разрушается при увеличении магнитного поля или температуры, приводя к аномальной зависимости времени T_1 от магнитного поля.

5. В квантовой яме на основе GaAs с высокоподвижным электронным газом обнаружена аномальная линейная зависимость времени продольной спиновой релаксации T_1 от магнитного поля, связанная с аномальной диффузией электронного газа. В больших полях и при низких температурах, в режиме квантового эффекта Холла, обнаружено резонансное замедление продольной спиновой релаксации на четных факторах заполнения, связанное с минимумами плотности состояний на уровне Ферми. В частности, при $\nu = 2$ время T_1 достигает субмикросекундных значений.

6. Измерена динамика спинового ансамбля однократно заряженных (In,Ga)As/GaAs квантовых точек после остановки периодического импульсного лазерного возбуждения. Получен спектр свободной спиновой прецессии, имеющий модовую структуру, определяемую периодичностью лазерной накачки. Показано, что динамическая поляризация ядер радикально ускоряет формирование модовой структуры и приводит к формированию дополнительных мод.

7. Разработан радиооптический метод накачки–зондирования, в котором спиновая ориентация осуществляется резким изменением магнитного поля или импульсом РЧ поля, а детектирование спиновой динамики оптическим импульсом. В зависимости от направления постоянного поля, а также временного профиля переменного поля, данный метод позволяет определять частоту спиновой прецессии и времена спиновой релаксации.

8. Обнаружен и исследован комбинированный резонанс при радиочастотной и периодической оптической накачке спиновой системы в магнитном поле при близких частотах

ларморовской прецессии, РЧ поля и частоты следования лазерных импульсов. Показано, что РЧ поле может как подавлять оптическое резонансное спиновое усиление, так и индуцировать новые спиновые резонансы.

9. Предсказан и обнаружен эффект стимулированного резонансного спинового усиления, позволяющий определить время спиновой когерентности T_2, свободное от влияния шумного окружения. Он наблюдается при периодическом оптическом возбуждении неоднородной спиновой системы и приложении РЧ поля. В условиях комбинированного резонанса РЧ поле стимулирует оптическое спиновое усиление. С помощью данного эффекта, сканируя частоту РЧ поля относительно частоты следования лазерных импульсов, в системе ионов церия в решетке аллюмо-иттриевого граната, Ce^{3+}:YAG, измерен рекордно-узкий спиновый резонанс шириной в несколько десятков герц, соответствующий миллисекундному времени спиновой когерентности.

10. Разработан метод резонансной спиновой инерции, позволяющий определять время продольной спиновой релаксации T_1, соответствующее конкретному спиновому резонансу. Метод основан на оптической накачке спиновой поляризации вдоль постоянного магнитного поля и воздействии на эту поляризацию резонансным РЧ полем, которое ее уменьшает, что детектируется также оптически, посредством измерения фарадеевского/керровского вращения. Модулируя амплитуду РЧ поля, можно наблюдать модуляцию спиновой поляризации, глубина которой зависит от соотношения между периодом модуляции и временем T_1, позволяя определить T_1. С помощью данного метода, в частности, была обнаружена сильная анизотропия времени T_1 в Ce^{3+}:YAG.

Следует отметить, что разработанные методы исследования спиновой динамики могут быть применены к самому широкому кругу систем, состоящих из большого спинового ансамбля. Пожалуй, наиболее очевидными необходимыми условиями их применимости являются (i) наличие оптического перехода в диапазоне, доступном используемому лазеру, для оптической спиновой ориентации; (ii) существенное поглощение на этом оптическом переходе, которое должно составлять не менее единиц процентов; (iii) удовлетворительное качество поверхности образца, позволяющее детектировать прошедший, либо отраженный от образца лазерный луч. Также общие закономерности, выявленные при исследовании спиновой динамики в объемном n-GaAs при переходе от локализованных к делокализованным спинам, по-видимому, относятся и к более широкому классу полупроводниковых систем с отсутствующим центром инверсии, где велика роль спин-орбитального взаимодействия в спиновой релаксации.

Представленные здесь исследования открывают также ряд новых интересных проблем. Так в главе 2 была установлена связь между неоднородным разбросом частот спиновой прецессии $\delta\omega_{\mathrm{L}}$ электронов в ансамбле n-GaAs, определяющим время T_2^*, и временем T_1. Однако за кадром осталось количественное описание увеличения T_2^* с увеличением концентрации доноров и температуры. Эта задача может быть весьма интересной, так как здесь прослеживается аналогия с андерсоновской локализацией и переходом Андерсона при увеличении концентрации (при нулевой температуре), только не для самих электронов, а для их спинов. Действительно, мы имеем систему спинов, энергия которых имеет разброс $\hbar\delta\omega_{\mathrm{L}}$, а обменное взаимодействие межу соседними спинами Δ. По аналогии с результатом Андерсона [148] можно предположить, что при $\Delta \ll \hbar\delta\omega_{\mathrm{L}}$ спиновые состояния являются локализованными. При увеличении концентрации доноров, увеличивается Δ и появляется зона свободных спиновых состояний, происходит спиновая диффузия, уменьшающая время корреляции спина τ_{c} и увеличивающая T_2^* за счет динамического усреднения. При этом сами электроны могут оставаться локализованными на донорах.

Другим, не менее интересным и до конца не ясным вопросом является вопрос о времени спиновой когерентности T_2, определяемом в методе стимулированного резонансного спинового усиления. Мы предположили, что миллисекундное время T_2 в Ce^{3+}:YAG возникает за счет "отвязывания" электронной спиновой системы от шумного окружения РЧ полем. Однако, некоторые эксперименты, в частности, эксперимент с прямоугольной модуляцией РЧ поля (Рис. 5.17), указывают на то, что длинное T_2 может наблюдаться и без воздействия на систему РЧ поля. Действительно, в указанном эксперименте период модуляции РЧ поля составляет 0.5 мс, тогда как $T_2 \approx 2$ мс. То есть за время T_2 РЧ поле полностью выключается около 4-х раз, и примерно половину времени система находится без воздействия РЧ поля, что должно было бы привести к дефазировке в случае короткого T_2 при отсутствии РЧ поля. Этот парадокс требует осознания и делает результаты, представленные в главе 5 еще более важными как с фундаментальной, так и с практической точки зрения.

Список сокращений и обозначений

Во всех формулах, приведенных в данной диссертации, использовалась система СИ.

MIT – metal-to-insulator transition, переход металл–изолятор;

YAG – иттрий-алюминиевый гранат;

АОМ (AOM) – акустооптический модулятор;

ДЭГ (2DEG) – двумерный электронный газ;

КЭХ – квантовый эффект Холла;

КЯ – квантовая яма;

КТ – квантовая точка;

РСУ (RSA) – резонансное спиновое усиление;

РЧ (rf) – радиочастота;

ССМ (ML) – синхронизация спиновых мод;

ФЭМ (PEM) – фотоэластический модулятор;

ФЛ (PL) – фотолюминесценция;

ЭОМ (EOM) – электрооптический модулятор;

ЭПР (ESR) – электронный парамагнитный резонанс;

DCP – degree of circular polarization;

PRC – polarization recovery curve;

B – магнитное поле;

B_{F} – магнитное поле, приложенное в геометрии Фарадея;

B_{V} – магнитное поле, приложенное в геометрии Фогта;

b – амплитуда радиочастотного поля;

c – скорость света;

D – коэффициент диффузии;

e – заряд электрона;

f_{L} – частота Лармора;

f_{m} – частота модуляции;

f_{o} – частота повторения оптических (лазерных) импульсов;

f_{rf} – частота радиочастотного поля;

g – g фактор;

h – постоянная Планка;

$\hbar$ – приведенная постоянная Планка;

m_{e} – масса электрона;

μ_{B} – магнетон Бора;

n_{D} – концентрация доноров;

n_{e} – концентрация электронов;

P – мощность лазерной накачки;

T – температура;

T_1 – время продольной спиновой релаксации;

T_2 – время поперечной спиновой релаксации (время спиновой когерентности);

T_2^* – время неоднородной поперечной дефазировки спинового ансамбля;

T_{o} – период повторения оптических (лазерных) импульсов;

τ_{c} – время корреляции;

τ_{s} – время спиновой релаксации (как правило, в нулевом магнитном поле);

τ_p – время релаксации импульса;

τ_3 – время релаксации третьей угловой гармоники;

U_{rf} – амплитуда радиочастотного напряжения;

ω_{c} – угловая частота циклотронной прецессии электрона;

ω_{rf} – угловая частота радиочастотного поля;

ω_{L} – угловая частота Лармора;

Ω_{R} – частота Раби;

Благодарности

Как известно, мы стоим на плечах гигантов. В моем случае этими гигантами являлись сотрудники кафедры E2 Технического университета Дортмунда и ФИАН. Они дали мне те знания, опыт и участие, которые сделали возможным написание этой работы. Я благодарен своим учителям и близким коллегам из E2: Дмитрию Яковлеву за непрекращающееся сотрудничество, многочасовые обсуждения, неоценимый запас знаний и опыта как о самой науке, так и ее организации; Манфреду Байеру (Manfred Bayer) за возможность заниматься спиновой физикой 4 чудесных года в E2, его редкие, но очень точные советы, определившие направления моих исследований; Евгению Жукову за неоценимые практические знания – каждый раз, когда я настраиваю электрооптический модулятор или рассматриваю кривую восстановления поляризации, я вспоминаю о Евгении; Айко Эверсу (Eiko Evers) и Эрику Кирстайну (Erik Kirstein) за многие дни совместной продуктивной работы в лаборатории; Алексею Грейлиху за ценное сотрудничество и полезные советы – когда у меня возникают сомнения в том, что ансамбль лучше одной квантовой точки, я вспоминаю Алексея, и они пропадают; Илье Акимову за дружеское общение, его работа и рассказ об однолучевом методе RSA вдохновил исследования во второй части диссертации; Донгхаю Фонгу (Donghai Feng) за то, что открыл для меня замечательные ионы церия.

Я выражаю признательность сотрудникам ФИАН: моему учителю Николаю Сибельдину, который привил мне научные и жизненные принципы, которых я стараюсь придерживаться; Михаилу Скорикову, Виталию Цветкову и Михаилу Кочиеву за многолетнюю совместную работу и помощь; Денису Собьянину за теоретический вклад в представленные здесь работы и плодотворные дискуссии; Александру Кунцевичу за проведение транспортных измерений и полезные советы; моим молодым коллегам Марку Акмаеву, Александре Коротневой, Михаилу Кравцову, Евгении Кулебякиной, Сергею Мелякову за то что приняли эстафету спиновых исследований и не даете мне стареть.

Также я благодарен Михаилу Глазову за теоретическую поддержку и, в частности, описание эффектов слабой локализации, Кириллу Кавокину за теоретическое описание уди-

вительных эффектов в n-GaAs, Ирине Юговой и Наталье Коптевой за развитие теории синхронизации спиновых мод в квантовых точках, Дмитрию Азамату за его ЭПР исследования, которые очень пригодились для понимания спиновой динамики в Ce^{3+}:YAG. Я благодарен Филиппу Григорьеву, Владимиру Кореневу, Марии Кузнецовой, Андрею Михайлову, Михаилу Петрову, Сергею Полтавцеву, Феликсу Фоббе (Felix Fobbe), Фабиану Хайстеркампу (Fabian Heisterkamp), Елене Шорниковой за совместную работу и плодотворное общение.

Я также признателен своей супруге Наталье за моральную поддержку и помощь во всех начинаниях.

Публикации по теме диссертации в рецензируемых изданиях

[A1] *Belykh V. V.* Selective measurement of the longitudinal electron spin relaxation time T_1 of Ce^{3+} ions in a YAG lattice: Resonant spin inertia / V. V. Belykh, S. R. Melyakov // *Physical Review B.* — 2022. — Vol. 105, no. 20. — P. 205129.

[A2] *Belykh V. V.* Stimulated resonant spin amplification reveals millisecond electron spin coherence time of rare-earth ions in solids / V. V. Belykh, A. R. Korotneva, D. R. Yakovlev // *Physical Review Letters.* — 2021. — Vol. 127, no. 15. — P. 157401.

[A3] *Belykh V. V.* Resonant spin amplification meets electron spin resonance in n-GaAs / V. V. Belykh, D. N. Sob'yanin, A. R. Korotneva // *Physical Review B.* — 2020. — Vol. 102, no. 7. — P. 075201.

[A4] *Belykh V. V.* Optical detection of electron spin dynamics driven by fast variations of a magnetic field: a simple method to measure T_1, T_2, and T_2^* in semiconductors / V. V. Belykh, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Scientific Reports.* — 2020. — Vol. 10, no. 1. — P. 13155.

[A5] *Belykh V. V.* Anomalous magnetic suppression of spin relaxation in a two-dimensional electron gas in a GaAs/AlGaAs quantum well / V. V. Belykh, M. V. Kochiev, D. N. Sob'yanin, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2020. — Vol. 101, no. 23. — P. 235307.

[A6] *Belykh V. V.* Coherent spin dynamics of electrons and holes in $CsPbBr_3$ perovskite crystals / V. V. Belykh, D. R. Yakovlev, M. M. Glazov, P. S. Grigoryev, M. Hussain, J. Rautert, D. N. Dirin, M. V. Kovalenko, M. Bayer // *Nature Communications.* — 2019. — Vol. 10, no. 1. — P. 673.

[A7] *Belykh V. V.* Radiofrequency driving of coherent electron spin dynamics in n-GaAs detected by Faraday rotation / V. V. Belykh, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2019. — Vol. 99, no. 16. — P. 161205(R).

[A8] *Belykh V. V.* Quantum Interference Controls the Electron Spin Dynamics in n-GaAs / V. V. Belykh, A. Y. Kuntsevich, M. M. Glazov, K. V. Kavokin, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Physical Review X.* — 2018. — Vol. 8, no. 3. — P. 031021.

[A9] *Mikhailov A. V.* Electron and hole spin relaxation in InP-based self-assembled quantum dots emitting at telecom wavelengths / A. V. Mikhailov, V. V. Belykh, D. R. Yakovlev, P. S. Grigoryev, J. P. Reithmaier, M. Benyoucef, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2018. — Vol. 98, no. 20. — P. 205306.

[A10] *Evers E.* Decay and revival of electron spin polarization in an ensemble of (In,Ga)As quantum dots / E. Evers, V. V. Belykh, N. E. Kopteva, I. A. Yugova, A. Greilich, D. R. Yakovlev, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2018. — Vol. 98, no. 7. — P. 075309.

[A11] *Jäschke N.* Nonequilibrium nuclear spin distribution function in quantum dots subject to periodic pulses / N. Jäschke, A. Fischer, E. Evers, V. V. Belykh, A. Greilich, M. Bayer, F. B. Anders // *Physical Review B.* — 2017. — Vol. 96, no. 20. — P. 205419.

[A12] *Belykh V. V.* Electron charge and spin delocalization revealed in the optically probed longitudinal and transverse spin dynamics in n-GaAs / V. V. Belykh, K. V. Kavokin, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2017. — Vol. 96, no. 24. — P. 241201(R).

[A13] *Azamat D. V.* Electron spin dynamics of Ce^{3+} ions in YAG crystals studied by pulse-EPR and pump-probe Faraday rotation / D. V. Azamat, V. V. Belykh, D. R. Yakovlev, F. Fobbe, D. H. Feng, E. Evers, L. Jastrabik, A. Dejneka, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2017. — Vol. 96, no. 7. — P. 075160.

[A14] *Belykh V. V.* Dispersion of the electron g factor anisotropy in InAs/InP self-assembled quantum dots / V. V. Belykh, D. R. Yakovlev, J. J. Schindler, J. van Bree, P. M. Koenraad, N. S. Averkiev, M. Bayer, A. Y. Silov // *Journal of Applied Physics.* — 2016. — Vol. 120, no. 8. — P. 084301.

[A15] *Belykh V. V.* Large anisotropy of electron and hole g factors in infrared-emitting InAs/InAlGaAs self-assembled quantum dots / V. V. Belykh, D. R. Yakovlev, J. J. Schindler, E. A. Zhukov, M. A. Semina, M. Yacob, J. P. Reithmaier, M. Benyoucef, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2016. — Vol. 93, no. 12. — P. 125302.

[A16] *Belykh V. V.* Extended pump-probe Faraday rotation spectroscopy of the submicrosecond electron spin dynamics in n-type GaAs / V. V. Belykh, E. Evers, D. R. Yakovlev, F. Fobbe, A. Greilich, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2016. — Vol. 94, no. 24. — P. 241202(R).

[A17] *Belykh V. V.* Electron and hole g factors in InAs/InAlGaAs self-assembled quantum dots emitting at telecom wavelengths / V. V. Belykh, A. Greilich, D. R. Yakovlev, M. Yacob, J. P. Reithmaier, M. Benyoucef, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2015. — Vol. 92, no. 16. — P. 165307.

Публикации по теме диссертации в тезисах конференций

[Б1] V. V. Belykh, E. Evers, F. Fobbe, A. Greilich, D. R. Yakovlev, D. Reuter, A. D. Wieck, and M. Bayer. Advanced pump-probe Faraday rotation spectroscopy of electron spin dynamics in bulk GaAs and InGaAs quantum dots // 33rd International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2016), Beijing, China, July 31-August 5 2016. Abstracts book vol. 1, p. 422.

[Б2] V. V. Belykh, D. R. Yakovlev, J. J. Schindler, A. Greilich, E. A. Zhukov, M. A. Semina, M. Yacob, J. P. Reithmaier, M. Benyoucef, and M. Bayer. Large anisotropy of electron and hole g factors in InAs/InAlGaAs selfassembled quantum dots emitting at telecom wavelengths // 33rd International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2016), Beijing, China, July 31-August 5 2016. Abstracts book vol. 2, p. 303.

[Б3] В. В. Белых, E. Evers, A. Greilich, Д. Р. Яковлев, M. Bayer. Пикосекундная спектроскопия микросекундной спиновой динамики в полупроводниковых структурах. // XIII Российская конференция по физике полупроводников, Екатеринбург, 2–6 октября 2017. Сборник тезисов с. 260.

[Б4] V. Belykh, A. Kuntsevich, M. Glazov, K. Kavokin, D. Yakovlev, M. Bayer. Quantum interference controls the electron spin dynamics in n-GaAs // 34th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2018), Montpellier, France, July 29 - August 3 2018. Abstracts book p. 74.

[Б5] E. Evers, V.V. Belykh, N.E. Kopteva, I.A. Yugova, A. Greilich, D.R. Yakovlev, D. Reuter, A.D. Wieck, M. Bayer. Free dynamics of the electron spin precession in periodically pumped (In,Ga)As/GaAs quantum dots // 34th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2018), Montpellier, France, July 29 - August 3 2018. Abstracts book p. 190.

[Б6] V. V. Belykh, K. V. Kavokin, D. R. Yakovlev, and M. Bayer. Metal-to-insulator transition in n-GaAs revealed in coherent spin dynamics of optically oriented electrons // 50 Years of Optical Orientation in Semiconductors: From the original discovery to new horizons, Paris, 18-19 June 2018. Abstracts book p. 52.

[Б7] В. В. Белых, Д. Р. Яковлев, M. Bayer. Радиочастотный запуск когерентной спиновой динамики в n-GaAs и ее детектирование посредством фарадеевского вращения // XIV Российская конференция по физике полупроводников, Новосибирск, 9-13 сентября 2019. Сборник тезисов с. 283.

[Б8] В. В. Белых, М. В. Кочиев, Д. Р. Яковлев, M. Bayer. Спиновая динамика двумерного электронного газа в режиме квантового эффекта Холла // XIV Российская конференция по физике полупроводников, Новосибирск, 9-13 сентября 2019. Сборник тезисов с. 295.

[Б9] V. V. Belykh, M. V. Kochiev, D. N. Sob'yanin, D. R. Yakovlev, and M. Bayer. Longitudinal spin dynamics of high-mobility two-dimensional electron gas // 28th International Symposium "Nanostructures: Physics and Technology", Minsk, September 28 - October 2 2020. Proceedings p. 174.

[Б10] В. В. Белых. Когерентная радиооптическая спектроскопия электронной спиновой динамики в твердотельных системах // XII международный симпозиум по фотонному эхо и когерентной спектроскопии (ФЭКС-2021), Казань, 25-30 октября 2021. Сборник тезисов с. 22.

[Б11] В. В. Белых, А. Р. Коротнева, Д. Р. Яковлев. Измерение миллисекундного времени электронной спиновой когерентности в редкоземельных ионах с помощью стимулированного резонансного спинового усиления // XXVI Международный симпозиум «Нанофизика и наноэлектроника», Нижний Новгород , 14–17 марта 2022 г. Сборник тезисов т. 1, с. 189.

Цитируемая литература

[1] *Odom B.* New Measurement of the Electron Magnetic Moment Using a One-Electron Quantum Cyclotron / B. Odom, D. Hanneke, B. D'Urso, G. Gabrielse // *Physical Review Letters.* — 2006. — Vol. 97, no. 3. — P. 030801.

[2] *Roth L. M.* Theory of optical magneto-absorption effects in semiconductors / L. M. Roth, B. Lax, S. Zwerdling // *Physical Review.* — 1959. — Vol. 114. — P. 90.

[3] *Evers E.* Nuclear spin dynamics influenced and detected by electron spin polarization in CdTe/(Cd,Mg)Te quantum wells / E. Evers, T. Kazimierczuk, F. Mertens, D. R. Yakovlev, G. Karczewski, T. Wojtowicz, J. Kossut, M. Bayer, A. Greilich // *Physical Review B.* — 2019. — Vol. 99, no. 4. — P. 045303.

[4] *Kirstein E.* Lead-Dominated Hyperfine Interaction Impacting the Carrier Spin Dynamics in Halide Perovskites / E. Kirstein, D. R. Yakovlev, M. M. Glazov, E. Evers, E. A. Zhukov, V. V. Belykh, N. E. Kopteva, D. Kudlacik, O. Nazarenko, D. N. Dirin, M. V. Kovalenko, M. Bayer // *Advanced Materials.* — 2022. — Vol. 34, no. 1. — P. 2105263.

[5] *Loss D.* Quantum computation with quantum dots / D. Loss, D. P. DiVincenzo // *Physical Review A.* — 1998. — Vol. 57, no. 1. — P. 120.

[6] *Awschalom D. D.* Optical Manipulation, Tranport and Storage of Spin Coherence in Semiconductors / D. D. Awschalom, N. Samarth // Semiconductor Spintronics and Quantum Computation / Ed. by D. Awschalom, D. Loss, N. Samarth. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2002. — P. 147.

[7] *Siyushev P.* Coherent properties of single rare-earth spin qubits / P. Siyushev, K. Xia, R. Reuter, M. Jamali, N. Zhao, N. Yang, C. Duan, N. Kukharchyk, A. D. Wieck, R. Kolesov, J. Wrachtrup // *Nature Communications.* — 2014. — Vol. 5. — P. 3895.

[8] *Golovach V. N.* Phonon-Induced Decay of the Electron Spin in Quantum Dots / V. N. Golovach, A. Khaetskii, D. Loss // *Physical Review Letters.* — 2004. — Vol. 93, no. 1. — P. 016601.

[9] *Baumberg J. J.* Spin beats and dynamical magnetization in quantum structures / J. J. Baumberg, D. D. Awschalom, N. Samarth, H. Luo, J. K. Furdyna // *Physical Review Letters.* — 1994. — Vol. 72, no. 5. — P. 717.

[10] *Zheludev N. I.* Giant specular inverse Faraday effect in $Cd_{0.6}Mn_{0.4}Te$ / N. I. Zheludev, M. A. Brummell, R. T. Harley, A. Malinowski, S. V. Popov, D. E. Ashenford, B. Lunn // *Solid State Communications.* — 1994. — Vol. 89, no. 10. — P. 823.

[11] *Kimel A. V.* Ultrafast non-thermal control of magnetization by instantaneous photomagnetic pulses / A. V. Kimel, A. Kirilyuk, P. A. Usachev, R. V. Pisarev, A. M. Balbashov, T. Rasing // *Nature.* — 2005. — Vol. 435, no. 7042. — P. 655–657.

[12] *Kalashnikova A. M.* Ultrafast opto-magnetism / A. M. Kalashnikova, A. V. Kimel, R. V. Pisarev // *Physics-Uspekhi.* — 2015. — Vol. 58, no. 10. — P. 969–980.

[13] *Borovkova O. V.* Spectrally Selective Detection of Short Spin Waves in Magnetoplasmonic Nanostructures via the Magneto-Optical Intensity Effect / O. V. Borovkova, S. V. Lutsenko, M. A. Kozhaev, A. N. Kalish, V. I. Belotelov // *Nanomaterials.* — 2022. — Vol. 12. — P. 405.

[14] *Pikus G. E.* Spin relaxation under optical orientation in semiconductors / G. E. Pikus, A. N. Titkov // Optical Orientation / Ed. by F. Meier, B. P. Zakharchenya. — Amsterdam: North-Holland, 1984. — P. 109.

[15] *Dzhioev R. I.* Low-temperature spin relaxation in n-type GaAs / R. I. Dzhioev, K. V. Kavokin, V. L. Korenev, M. V. Lazarev, B. Y. Meltser, M. N. Stepanova, B. P. Zakharchenya, D. Gammon, D. S. Katzer // *Physical Review B.* — 2002. — Vol. 66, no. 24. — P. 245204.

[16] *Dyakonov M. I.* Spin relaxation of conduction electrons in noncentrosymmetric semiconductors / M. I. Dyakonov, V. I. Perel // *Sov. Phys. Solid State.* — 1972. — Vol. 13. — P. 3023.

[17] *Colton J. S.* Microsecond spin-flip times in n-GaAs measured by time-resolved polarization of photoluminescence / J. S. Colton, T. A. Kennedy, A. S. Bracker, D. Gammon // *Physical Review B.* — 2004. — Vol. 69, no. 12. — P. 121307(R).

[18] *Colton J. S.* Anomalous magnetic field dependence of the T_1 spin lifetime in a lightly doped GaAs sample / J. S. Colton, M. E. Heeb, P. Schroeder, A. Stokes, L. R. Wienkes, A. S. Bracker // *Physical Review B.* — 2007. — Vol. 75, no. 20. — P. 205201.

[19] *Fu K.-M. C.* Millisecond spin-flip times of donor-bound electrons in GaAs / K.-M. C. Fu, W. Yeo, S. Clark, C. Santori, C. Stanley, M. C. Holland, Y. Yamamoto // *Physical Review B.* — 2006. — Vol. 74, no. 12. — P. 121304(R).

[20] *Linpeng X.* Longitudinal spin relaxation of donor-bound electrons in direct band-gap semiconductors / X. Linpeng, T. Karin, M. V. Durnev, R. Barbour, M. M. Glazov, E. Y. Sherman, S. P. Watkins, S. Seto, K.-M. C. Fu // *Physical Review B.* — 2016. — Vol. 94, no. 12. — P. 125401.

[21] *Merkulov I. A.* Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots / I. A. Merkulov, A. L. Efros, M. Rosen // *Physical Review B.* — 2002. — Vol. 65, no. 20. — P. 205309.

[22] *Bechtold A.* Three-stage decoherence dynamics of an electron spin qubit in an optically active quantum dot / A. Bechtold, D. Rauch, F. Li, T. Simmet, P.-L. Ardelt, A. Regler, K. Müller, N. Sinitsyn, J. J. Finley // *Nature Physics.* — 2015. — Vol. 11, no. 12. — P. 1005.

[23] *Greilich A.* Mode locking of electron spin coherences in singly charged quantum dots / A. Greilich, D. R. Yakovlev, A. Shabaev, A. L. Efros, I. A. Yugova, R. Oulton, V. Stavarache, D. Reuter, A. Wieck, M. Bayer // *Science (New York, N.Y.).* — 2006. — Vol. 313. — P. 341.

[24] *Crooker S.* Time-resolved Faraday rotation spectroscopy of spin dynamics in digital magnetic heterostructures / S. Crooker, D. Awschalom, N. Samarth // *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics.* — 1995. — Vol. 1, no. 4. — P. 1082–1092.

[25] *Crooker S. A.* Optical spin resonance and transverse spin relaxation in magnetic semiconductor quantum wells / S. A. Crooker, D. D. Awschalom, J. J. Baumberg, F. Flack, N. Samarth // *Physical Review B.* — 1997. — Vol. 56, no. 12. — P. 7574–7588.

[26] *Worsley R. E.* Transient Linear Birefringence in GaAs Quantum Wells: Magnetic Field Dependence of Coherent Exciton Spin Dynamics / R. E. Worsley, N. J. Traynor, T. Grevatt, R. T. Harley // *Physical Review Letters.* — 1996. — Vol. 76, no. 17. — P. 3224–3227.

[27] *Zhukov E. A.* Spin coherence of two-dimensional electron gas in CdTe/(Cd,Mg)Te quantum wells / E. A. Zhukov, D. R. Yakovlev, M. Bayer, G. Karczewski, T. Wojtowicz, J. Kossut // *physica status solidi (b).* — 2006. — Vol. 243, no. 4. — P. 878–881.

[28] *Bratschitsch R.* Electron spin coherence in n-doped CdTe/CdMgTe quantum wells / R. Bratschitsch, Z. Chen, S. T. Cundiff, E. A. Zhukov, D. R. Yakovlev, M. Bayer, G. Kar-

czewski, T. Wojtowicz, J. Kossut // *Applied Physics Letters.* — 2006. — Vol. 89, no. 22. — P. 221113.

[29] *Kennedy T. A.* Optical initialization and dynamics of spin in a remotely doped quantum well / T. A. Kennedy, A. Shabaev, M. Scheibner, A. L. Efros, A. S. Bracker, D. Gammon // *Physical Review B.* — 2006. — Vol. 73, no. 4. — P. 045307.

[30] *Zhukov E. A.* Renormalization of the electron g factor in the degenerate two-dimensional electron gas of ZnSe- and CdTe-based quantum wells / E. A. Zhukov, V. N. Mantsevich, D. R. Yakovlev, N. E. Kopteva, E. Kirstein, A. Waag, G. Karczewski, T. Wojtowicz, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2020. — Vol. 102, no. 12. — P. 125306.

[31] *Zhukov E. A.* Magnetic field dependence of the in-plane hole g factor in ZnSe- and CdTe-based quantum wells / E. A. Zhukov, V. N. Mantsevich, D. R. Yakovlev, I. S. Krivenko, V. V. Nedelea, D. Kowski, A. Waag, G. Karczewski, T. Wojtowicz, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2021. — Vol. 103, no. 12. — P. 125305.

[32] *Heberle A. P.* Quantum beats of electron Larmor precession in GaAs wells / A. P. Heberle, W. W. Rühle, K. Ploog // *Physical Review Letters.* — 1994. — Vol. 72, no. 24. — P. 3887–3890.

[33] *Hannak R.* Electron g factor in quantum wells determined by spin quantum beats / R. Hannak, M. Oestreich, A. Heberle, W. Ru¨hle, K. Ko¨hler // *Solid State Communications.* — 1995. — Vol. 93, no. 4. — P. 313–317.

[34] *Amand T.* Spin Quantum Beats of 2D Excitons / T. Amand, X. Marie, P. Le Jeune, M. Brousseau, D. Robart, J. Barrau, R. Planel // *Physical Review Letters.* — 1997. — Vol. 78, no. 7. — P. 1355–1358.

[35] *Marie X.* Hole spin quantum beats in quantum-well structures / X. Marie, T. Amand, P. Le Jeune, M. Paillard, P. Renucci, L. E. Golub, V. D. Dymnikov, E. L. Ivchenko // *Physical Review B.* — 1999. — Vol. 60, no. 8. — P. 5811–5817.

[36] *Fukuoka D.* Spin dynamics of two-dimensional electrons in a quantum Hall system probed by time-resolved Kerr rotation spectroscopy / D. Fukuoka, T. Yamazaki, N. Tanaka, K. Oto, K. Muro, Y. Hirayama, N. Kumada, H. Yamaguchi // *Physical Review B.* — 2008. — Vol. 78, no. 4. — P. 041304.

[37] *Fukuoka D.* Skyrmion Effect on the Relaxation of Spin Waves in a Quantum Hall Ferromagnet / D. Fukuoka, K. Oto, K. Muro, Y. Hirayama, N. Kumada // *Physical Review Letters.* — 2010. — Vol. 105, no. 12. — P. 126802.

[38] *Larionov A. V.* Goldstone mode stochastization in a quantum Hall ferromagnet / A. V. Larionov, L. V. Kulik, S. Dickmann, I. V. Kukushkin // *Physical Review B.* — 2015. — Vol. 92, no. 16. — P. 165417.

[39] *Larionov A. V.* Spin dephasing of a two-dimensional electron gas in a GaAs quantum well near odd filling factors / A. V. Larionov, E. Stepanets-Khussein, L. V. Kulik // *JETP Letters.* — 2017. — Vol. 105, no. 4. — P. 238–240.

[40] *Larionov A. V.* Investigation of spin stiffness in spin-depolarized states of two-dimensional electron systems with time-resolved Kerr rotation / A. V. Larionov, E. Stepanets-Khussein, L. V. Kulik, V. Umansky, I. V. Kukushkin // *Scientific Reports.* — 2020. — Vol. 10, no. 1. — P. 2270.

[41] *Dickmann S.* Extremely Slow Spin Relaxation in a Spin-Unpolarized Quantum Hall System / S. Dickmann // *Phys. Rev. Lett.* — 2013. — Vol. 110. — P. 166801.

[42] *Kavokin K. V.* Spin relaxation of localized electrons in n-type semiconductors / K. V. Kavokin // *Semiconductor Science and Technology.* — 2008. — Vol. 23, no. 11. — P. 114009.

[43] *Lyubinskiy I. S.* Slowing down of spin relaxation in two-dimensional systems by quantum interference effects / I. S. Lyubinskiy, V. Y. Kachorovskii // *Physical Review B.* — 2004. — Vol. 70, no. 20. — P. 205335.

[44] *Lyubinskiy I. S.* Hanle Effect Driven by Weak Localization / I. S. Lyubinskiy, V. Y. Kachorovskii // *Physical Review Letters.* — 2005. — Vol. 94, no. 7. — P. 076406.

[45] *Kopteva N. E.* Theoretical Modeling of the Nuclear Field Induced Tuning of the Electron Spin Precession for Localized Spins / N. E. Kopteva, I. A. Yugova, E. A. Zhukov, E. Kirstein, E. Evers, V. V. Belykh, V. L. Korenev, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. Greilich // *physica status solidi (b).* — 2019. — Vol. 256, no. 6. — P. 1800534.

[46] *Garcia-Arellano G.* Longitudinal spin relaxation time of donor-bound electrons in a CdTe quantum well / G. Garcia-Arellano, F. Bernardot, G. Karczewski, C. Testelin, M. Chamarro // *Physical Review B.* — 2020. — Vol. 102, no. 16. — P. 165314.

[47] *Zavoisky E. K.* Paramagnetic Absorption in Perpendicular and Parallel Fields for Salts, Solutions and Metals: Phd thesis. — 1944.

[48] *Zavoisky E. K.* Spin-magnetic resonance in paramagnetics / E. Zavoisky // *J. Phys. USSR.* — 1945. — Vol. 9. — P. 211.

[49] *Schweiger A.* Principles of pulse electron paramagnetic resonance / A. Schweiger, G. Jeschke. — New York: Oxford University Press, 2001.

[50] *Hahn E. L.* Spin echoes / E. L. Hahn // *Physical Review.* — 1950. — Vol. 80, no. 4. — P. 580.

[51] *Dawson P.* Time resolved optically detected resonance in ZnS / P. Dawson, B. Cavenett // *Journal of Luminescence.* — 1979. — Vol. 18-19. — P. 853.

[52] *Cavenett B. C.* Optically detected magnetic resonance (O.D.M.R.) investigations of recombination processes in semiconductors / B. C. Cavenett // *Advances in Physics.* — 1981. — Vol. 30, no. 4. — P. 475–538.

[53] *Ivanov V. Y.* Optically detected magnetic resonance of indirect excitons in an ensemble of (In,Al,Ga)As/(Al,Ga)As quantum dots / V. Y. Ivanov, D. O. Tolmachev, T. S. Shamirzaev, T. Słupinski, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2021. — Vol. 104, no. 19. — P. 195306.

[54] *Kolesov R.* Mapping spin coherence of a single rare-earth ion in a crystal onto a single photon polarization state / R. Kolesov, K. Xia, R. Reuter, M. Jamali, R. Stöhr, T. Inal, P. Siyushev, J. Wrachtrup // *Physical Review Letters.* — 2013. — Vol. 111, no. 12. — P. 120502.

[55] Optical Orientation / Ed. by F. Meier, B. P. Zakharchenya. — Amsterdam: Horth-Holland, 1984.

[56] *Brossel J.* No Title / J. Brossel, A. Kastler // *Compt. rend.* — 1949. — Vol. 229. — P. 1213.

[57] *Kastler A.* Quelques suggestions concernant la production optique et la détection optique d'une inégalité de population des niveaux de quantifigation spatiale des atomes. Application à l'expérience de Stern et Gerlach et à la résonance magnétique / A. Kastler // *J. Phys. Radium.* — 1950. — Vol. 11. — P. 225.

[58] *Kastler A.* No Title / A. Kastler // *Compt. Rend.* — 1951. — Vol. 232. — P. 953.

[59] *Brossel J.* A New "Double Resonance"Method for Investigating Atomic Energy Levels. Application to Hg^3P_1 / J. Brossel, F. Bitter // *Physical Review.* — 1952. — Vol. 86, no. 3. — P. 308–316.

[60] *HAPPER W.* Optical Pumping / W. HAPPER // *Reviews of Modern Physics.* — 1972. — Vol. 44, no. 2. — P. 169–249.

[61] *Lampel G.* Nuclear Dynamic Polarization by Optical Electronic Saturation and Optical Pumping in Semiconductors / G. Lampel // *Physical Review Letters.* — 1968. — Vol. 20, no. 10. — P. 491–493.

[62] *Parsons R. R.* Band-To-Band Optical Pumping in Solids and Polarized Photoluminescence / R. R. Parsons // *Physical Review Letters.* — 1969. — Vol. 23, no. 20. — P. 1152–1154.

[63] *Hanle W.* Uber magnetische Beeinflussung der Polarisation der Resonanzfluoreszenz / W. Hanle // *Zeitschrift fur Physik.* — 1924. — Vol. 30, no. 1. — P. 93–105.

[64] *Bloch F.* Nuclear Induction / F. Bloch // *Physical Review.* — 1946. — Vol. 70, no. 7-8. — P. 460.

[65] *Fishman G.* Spin relaxation of photoelectrons in p-type gallium arsenide / G. Fishman, G. Lampel // *Physical Review B.* — 1977. — Vol. 16, no. 2. — P. 820–831.

[66] *Paget D.* Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions / D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval, V. I. Safarov // *Physical Review B.* — 1977. — Vol. 15, no. 12. — P. 5780–5796.

[67] *Paget D.* Optical detection of NMR in high-purity GaAs under optical pumping: Efficient spin-exchange averaging between electronic states / D. Paget // *Physical Review B.* — 1981. — Vol. 24, no. 7. — P. 3776.

[68] *Paget D.* Optical-pumping study of spin-dependent recombination in GaAs / D. Paget // *Physical Review B.* — 1984. — Vol. 30, no. 2. — P. 931–946.

[69] *Kalevich V.* Effect of electric field on the optical orientation of 2D electrons / V. Kalevich, V. Korenev // *JETP Lett.* — 1990. — Vol. 52. — P. 230.

[70] *Dzhioev R. I.* Optical orientation of donor-bound excitons in nanosized InP/InGaP islands / R. I. Dzhioev, B. P. Zakharchenya, V. L. Korenev, P. E. Pak, D. A. Vinokurov, O. V. Kovalenkov, I. S. Tarasov // *Physics of the Solid State.* — 1998. — Vol. 40, no. 9. — P. 1587–1593.

[71] *Dzhioev R. I.* Manipulation of the Spin Memory of Electrons in n-GaAs / R. I. Dzhioev, V. L. Korenev, I. A. Merkulov, B. P. Zakharchenya, D. Gammon, A. L. Efros, D. S. Katzer // *Physical Review Letters.* — 2002. — Vol. 88, no. 25. — P. 256801.

[72] *Dzhioev R. I.* Optical orientation and the Hanle effect of neutral and negatively charged excitons in GaAs / R. I. Dzhioev, V. L. Korenev, B. P. Zakharchenya, D. Gammon, A. S. Bracker, J. G. Tischler, D. S. Katzer // *Physical Review B.* — 2002. — Vol. 66, no. 15. — P. 153409.

[73] *Averkiev N. S.* Spin-relaxation anisotropy in asymmetrical (001) $Al_xGa_{1-x}As$ quantum wells from Hanle-effect measurements: Relative strengths of Rashba and Dresselhaus spin-orbit coupling / N. S. Averkiev, L. E. Golub, A. S. Gurevich, V. P. Evtikhiev, V. P. Kochereshko, A. V. Platonov, A. S. Shkolnik, Y. P. Efimov // *Physical Review B.* — 2006. — Vol. 74, no. 3. — P. 033305.

[74] *Koudinov A. V.* Optical spin orientation of minority holes in a modulation-doped GaAs/(Ga,Al)As quantum well / A. V. Koudinov, R. I. Dzhioev, V. L. Korenev, V. F. Sapega, Y. G. Kusrayev // *Physical Review B.* — 2016. — Vol. 93, no. 16. — P. 165301.

[75] *Lonnemann J. G.* Closing the gap between spatial and spin dynamics of electrons at the metal-to-insulator transition / J. G. Lonnemann, E. P. Rugeramigabo, M. Oestreich, J. Hübner // *Physical Review B.* — 2017. — Vol. 96, no. 4. — P. 045201.

[76] *Overhauser A. W.* Polarization of Nuclei in Metals / A. W. Overhauser // *Physical Review.* — 1953. — Vol. 92, no. 2. — P. 411.

[77] *Smirnov D. S.* Theory of spin inertia in singly charged quantum dots / D. S. Smirnov, E. A. Zhukov, E. Kirstein, D. R. Yakovlev, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Bayer, A. Greilich, M. M. Glazov // *Physical Review B.* — 2018. — Vol. 98, no. 12. — P. 125306.

[78] *Yugova I. A.* Fine structure and spin quantum beats in InP quantum dots in a magnetic field / I. A. Yugova, I. Y. Gerlovin, V. G. Davydov, I. V. Ignatiev, I. E. Kozin, H. W. Ren, M. Sugisaki, S. Sugou, Y. Masumoto // *Physical Review B.* — 2002. — Vol. 66, no. 23. — P. 235312.

[79] *Lombez L.* Electron spin quantum beats in positively charged quantum dots: Nuclear field effects / L. Lombez, P.-F. Braun, X. Marie, P. Renucci, B. Urbaszek, T. Amand, O. Krebs, P. Voisin // *Physical Review B.* — 2007. — Vol. 75, no. 19. — P. 195314.

[80] *Nekrasov S. V.* Effect of nuclear quadrupole interaction on spin beats in photoluminescence polarization dynamics of charged excitons in InP/(In,Ga)P quantum dots / S. V. Nekrasov, I. A. Akimov, Y. G. Kusrayev, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2019. — Vol. 100, no. 23. — P. 235415.

[81] *Dyakonov M.* Coherent spin dynamics of excitons in quantum wells / M. Dyakonov, X. Marie, T. Amand, P. Le Jeune, D. Robart, M. Brousseau, J. Barrau // *Physical Review B.* — 1997. — Vol. 56, no. 16. — P. 10412–10422.

[82] *Wagner J.* Observation of extremely long electron-spin-relaxation times in p-type δ-doped GaAs/Al_xGa_{1-x}As double heterostructures / J. Wagner, H. Schneider, D. Richards, A. Fischer, K. Ploog // *Physical Review B.* — 1993. — Vol. 47, no. 8. — P. 4786–4789.

[83] *Gotoh H.* Spin relaxation of excitons in zero-dimensional InGaAs quantum disks / H. Gotoh, H. Ando, H. Kamada, A. Chavez-Pirson, J. Temmyo // *Applied Physics Letters.* — 1998. — Vol. 72, no. 11. — P. 1341–1343.

[84] *Shamirzaev T. S.* Spin dynamics and magnetic field induced polarization of excitons in ultrathin GaAs/AlAs quantum wells with indirect band gap and type-II band alignment / T. S. Shamirzaev, J. Rautert, D. R. Yakovlev, J. Debus, A. Y. Gornov, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2017. — Vol. 96, no. 3. — P. 035302.

[85] *Shamirzaev T. S.* Recombination and spin dynamics of excitons in thin (Ga,Al)(Sb,As)/AlAs quantum wells with an indirect band gap and type-I band alignment / T. S. Shamirzaev, D. R. Yakovlev, A. K. Bakarov, N. E. Kopteva, D. Kudlacik, A. K. Gutakovskii, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2020. — Vol. 102, no. 16. — P. 165423.

[86] *Smirnov D. S.* Dynamic Polarization of Electron Spins Interacting with Nuclei in Semiconductor Nanostructures / D. S. Smirnov, T. S. Shamirzaev, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Physical Review Letters.* — 2020. — Vol. 125, no. 15. — P. 156801.

[87] *Akimov I. A.* Electron spin dynamics in a self-assembled semiconductor quantum dot: the limit of low magnetic fields / I. A. Akimov, D. H. Feng, F. Henneberger // *Physical Review Letters.* — 2006. — Vol. 97, no. 5. — P. 056602.

[88] *Kroutvar M.* Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots / M. Kroutvar, Y. Ducommun, D. Heiss, M. Bichler, D. Schuh, G. Abstreiter, J. J. Finley // *Nature.* — 2004. — Vol. 432, no. 7013. — P. 81–84.

[89] *Heiss D.* Observation of extremely slow hole spin relaxation in self-assembled quantum dots / D. Heiss, S. Schaeck, H. Huebl, M. Bichler, G. Abstreiter, J. J. Finley, D. V. Bulaev, D. Loss // *Physical Review B.*— 2007.— Vol. 76, no. 24.— P. 241306.

[90] *Shank C. V.* Dynamics of Photoexcited GaAs Band-Edge Absorption with Subpicosecond Resolution / C. V. Shank, R. L. Fork, R. F. Leheny, J. Shah // *Physical Review Letters.*— 1979.— Vol. 42, no. 2.— P. 112–115.

[91] *Shah J.* Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures / J. Shah.— Berlin: Springer, 1996.

[92] *Shah J.* Determination of intervalley scattering rates in GaAs by subpicosecond luminescence spectroscopy / J. Shah, B. Deveaud, T. C. Damen, W. T. Tsang, A. C. Gossard, P. Lugli // *Physical Review Letters.*— 1987.— Vol. 59, no. 19.— P. 2222–2225.

[93] *Lin W. Z.* Femtosecond carrier dynamics in GaAs / W. Z. Lin, L. G. Fujimoto, E. P. Ippen, R. A. Logan // *Applied Physics Letters.*— 1987.— Vol. 50, no. 3.— P. 124–126.

[94] *Joffre M.* Coherent effects in pump–probe spectroscopy of excitons / M. Joffre, C. B. à. la Guillaume, N. Peyghambarian, M. Lindberg, D. Hulin, A. Migus, S. W. Koch, A. Antonetti // *Optics Letters.*— 1988.— Vol. 13, no. 4.— P. 276.

[95] *Awschalom D. D.* Dynamic Spin Organization in Dilute Magnetic Systems / D. D. Awschalom, J. M. Halbout, S. von Molnar, T. Siegrist, F. Holtzberg // *Physical Review Letters.*— 1985.— Vol. 55, no. 10.— P. 1128–1131.

[96] *Awschalom D. D.* Observation of polaron dynamics in magnetic quantum wells / D. D. Awschalom, M. R. Freeman, N. Samarth, H. Luo, J. K. Furdyna // *Physical Review Letters.*— 1991.— Vol. 66, no. 9.— P. 1212–1215.

[97] *Yakovlev D. R.* Coherent spin dynamics of carriers / D. R. Yakovlev, M. Bayer // Spin Physics in Semiconductors / Ed. by M. I. Dyakonov.— Cham: Springer International Publishing, 2017.— P. 155.

[98] *Bungay A.* Direct measurement of carrier spin relaxation times in opaque solids using the specular inverse Faraday effect / A. Bungay, S. Popov, I. Shatwell, N. Zheludev // *Physics Letters A.*— 1997.— Vol. 234, no. 5.— P. 379–383.

[99] *Kikkawa J. M.* Resonant Spin Amplification in n-Type GaAs / J. M. Kikkawa, D. D. Awschalom // *Physical Review Letters.*— 1998.— Vol. 80, no. 19.— P. 4313.

[100] *Greilich A.* Optical control of spin coherence in singly charged (In,Ga)As/GaAs quantum dots / A. Greilich, R. Oulton, E. A. Zhukov, I. A. Yugova, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. Shabaev, A. L. Efros, I. A. Merkulov, V. Stavarache, D. Reuter, A. Wieck // *Physical Review Letters.* — 2006. — Vol. 96. — P. 227401.

[101] *Mikkelsen M. H.* Optically detected coherent spin dynamics of a single electron in a quantum dot / M. H. Mikkelsen, J. Berezovsky, N. G. Stoltz, L. A. Coldren, D. D. Awschalom // *Nature Physics.* — 2007. — Vol. 3, no. 11. — P. 770–773.

[102] *Yugova I. A.* Pump-probe Faraday rotation and ellipticity in an ensemble of singly charged quantum dots / I. A. Yugova, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, A. L. Efros // *Physical Review B.* — 2009. — Vol. 80, no. 10. — P. 104436.

[103] *Yugova I. A.* Exciton fine structure in InGaAs/GaAs quantum dots revisited by pump-probe Faraday rotation / I. A. Yugova, A. Greilich, E. A. Zhukov, D. R. Yakovlev, M. Bayer, D. Reuter, A. D. Wieck // *Physical Review B.* — 2007. — Vol. 75, no. 19. — P. 195325.

[104] *Janβen N.* Ultrafast Spin Dynamics in Colloidal ZnO Quantum Dots / N. Janβen, K. M. Whitaker, D. R. Gamelin, R. Bratschitsch // *Nano Letters.* — 2008. — Vol. 8, no. 7. — P. 1991–1994.

[105] *Feng D. H.* Long-lived, room-temperature electron spin coherence in colloidal CdS quantum dots / D. H. Feng, X. Li, T. Q. Jia, X. Q. Pan, Z. R. Sun, Z. Z. Xu // *Applied Physics Letters.* — 2012. — Vol. 100, no. 12. — P. 122406.

[106] *Hu R.* Origin of Two Larmor Frequencies in the Coherent Spin Dynamics of Colloidal CdSe Quantum Dots Revealed by Controlled Charging / R. Hu, D. R. Yakovlev, P. Liang, G. Qiang, C. Chen, T. Jia, Z. Sun, M. Bayer, D. Feng // *The Journal of Physical Chemistry Letters.* — 2019. — Vol. 10, no. 13. — P. 3681–3687.

[107] *Pikus G. E.* Exchange interaction in excitons in semiconductors / G. E. Pikus, G. L. Bir // *Sov. Phys. JETP.* — 1971. — Vol. 33. — P. 108.

[108] *Goupalov S. V.* A tight-binding representation of electron-hole exchange interaction in semiconductors / S. V. Goupalov, E. L. Ivchenko // *Physics of the Solid State.* — 2001. — Vol. 43, no. 10. — P. 1867–1875.

[109] *Ramade J.* Fine structure of excitons and electron–hole exchange energy in polymorphic $CsPbBr_3$ single nanocrystals / J. Ramade, L. M. Andriambariarijaona, V. Steinmetz,

N. Goubet, L. Legrand, T. Barisien, F. Bernardot, C. Testelin, E. Lhuillier, A. Bramati, M. Chamarro // *Nanoscale.* — 2018. — Vol. 10, no. 14. — P. 6393–6401.

[110] *Sih V.* Control of electron-spin coherence using Landau level quantization in a two-dimensional electron gas / V. Sih, W. H. Lau, R. C. Myers, A. C. Gossard, M. E. Flatté, D. D. Awschalom // *Physical Review B.* — 2004. — Vol. 70, no. 16. — P. 161313.

[111] *Press D.* Ultrafast optical spin echo in a single quantum dot / D. Press, K. De Greve, P. L. McMahon, T. D. Ladd, B. Friess, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, A. Forchel, Y. Yamamoto // *Nature Photonics.* — 2010. — Vol. 4, no. 6. — P. 367–370.

[112] *Clark S. M.* Ultrafast Optical Spin Echo for Electron Spins in Semiconductors / S. M. Clark, K.-M. C. Fu, Q. Zhang, T. D. Ladd, C. Stanley, Y. Yamamoto // *Physical Review Letters.* — 2009. — Vol. 102, no. 24. — P. 247601.

[113] *Bechtold A.* Quantum Effects in Higher-Order Correlators of a Quantum-Dot Spin Qubit / A. Bechtold, F. Li, K. Müller, T. Simmet, P.-L. Ardelt, J. J. Finley, N. A. Sinitsyn // *Physical Review Letters.* — 2016. — Vol. 117, no. 2. — P. 027402.

[114] *Glazov M. M.* Resonant spin amplification in nanostructures with anisotropic spin relaxation and spread of the electronic g factor / M. M. Glazov, E. L. Ivchenko // *Semiconductors.* — 2008. — Vol. 42, no. 8. — P. 951–957.

[115] *Yugova I. A.* Coherent spin dynamics of electrons and holes in semiconductor quantum wells and quantum dots under periodical optical excitation: Resonant spin amplification versus spin mode locking / I. A. Yugova, M. M. Glazov, D. R. Yakovlev, A. A. Sokolova, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2012. — Vol. 85, no. 12. — P. 125304.

[116] *Lohrenz J.* Resonant spin amplification in intrinsic bulk germanium: Evidence for electron spin lifetimes exceeding 50 ns / J. Lohrenz, T. Paschen, M. Betz // *Physical Review B.* — 2014. — Vol. 89, no. 12. — P. 121201.

[117] *Griesbeck M.* Strongly anisotropic spin relaxation revealed by resonant spin amplification in (110) GaAs quantum wells / M. Griesbeck, M. M. Glazov, E. Y. Sherman, D. Schuh, W. Wegscheider, C. Schüller, T. Korn // *Physical Review B.* — 2012. — Vol. 85, no. 8. — P. 085313.

[118] *Zhukov E. A.* Resonant spin amplification of resident electrons in CdTe/(Cd,Mg)Te quantum wells subject to tilted magnetic fields / E. A. Zhukov, O. A. Yugov, I. A. Yugova,

D. R. Yakovlev, G. Karczewski, T. Wojtowicz, J. Kossut, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2012. — Vol. 86, no. 24. — P. 245314.

[119] *Schering P.* Resonant spin amplification in Faraday geometry / P. Schering, E. Evers, V. Nedelea, D. S. Smirnov, E. A. Zhukov, D. R. Yakovlev, M. Bayer, G. S. Uhrig, A. Greilich // *Physical Review B.* — 2021. — Vol. 103, no. 20. — P. L201301.

[120] *Bell W. E.* Optically Driven Spin Precession / W. E. Bell, A. L. Bloom // *Physical Review Letters.* — 1961. — Vol. 6, no. 6. — P. 280–281.

[121] *Saeed F.* Single-beam optical measurement of spin dynamics in CdTe/(Cd,Mg)Te quantum wells / F. Saeed, M. Kuhnert, I. A. Akimov, V. L. Korenev, G. Karczewski, M. Wiater, T. Wojtowicz, A. Ali, A. S. Bhatti, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2018. — Vol. 98, no. 7. — P. 075308.

[122] *Kotur M.* Single-beam resonant spin amplification of electrons interacting with nuclei in a GaAs/(Al,Ga)As quantum well / M. Kotur, F. Saeed, R. W. Mocek, V. L. Korenev, I. A. Akimov, A. S. Bhatti, D. R. Yakovlev, D. Suter, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2018. — Vol. 98, no. 20. — P. 205304.

[123] *Aleksandrov E. B.* Magnetic resonance in the Faraday-rotation noise spectrum / E. B. Aleksandrov, V. S. Zapasskii // *Sov. Phys. JETP.* — 1981. — Vol. 54. — P. 64.

[124] *Kuzmich A.* Quantum nondemolition measurements of collective atomic spin / A. Kuzmich, L. Mandel, J. Janis, Y. E. Young, R. Ejnisman, N. P. Bigelow // *Physical Review A.* — 1999. — Vol. 60, no. 3. — P. 2346–2350.

[125] *Sleator T.* Nuclear-spin noise / T. Sleator, E. L. Hahn, C. Hilbert, J. Clarke // *Physical Review Letters.* — 1985. — Vol. 55, no. 17. — P. 1742–1745.

[126] *Awschalom D. D.* Macroscopic Quantum Effects in Nanometer-Scale Magnets / D. D. Awschalom, D. P. DiVincenzo, J. F. Smyth // *Science.* — 1992. — Vol. 258, no. 5081. — P. 414–421.

[127] *Mitsui T.* Spontaneous Noise Spectroscopy of an Atomic Magnetic Resonance / T. Mitsui // *Physical Review Letters.* — 2000. — Vol. 84, no. 23. — P. 5292–5295.

[128] *Crooker S. A.* Spectroscopy of spontaneous spin noise as a probe of spin dynamics and magnetic resonance / S. A. Crooker, D. G. Rickel, A. V. Balatsky, D. L. Smith // *Nature.* — 2004. — Vol. 431, no. 7004. — P. 49.

[129] *Oestreich M.* Spin Noise Spectroscopy in GaAs / M. Oestreich, M. Römer, R. J. Haug, D. Hägele // *Physical Review Letters.* — 2005. — Vol. 95, no. 21. — P. 216603.

[130] *Crooker S. A.* Spin noise of conduction electrons in n-type bulk GaAs / S. A. Crooker, L. Cheng, D. L. Smith // *Physical Review B.* — 2009. — Vol. 79, no. 3. — P. 035208.

[131] *Müller G. M.* Gigahertz spin noise spectroscopy in n-doped bulk GaAs / G. M. Müller, M. Römer, J. Hübner, M. Oestreich // *Physical Review B.* — 2010. — Vol. 81, no. 12. — P. 121202(R).

[132] *Crooker S. A.* Spin Noise of Electrons and Holes in Self-Assembled Quantum Dots / S. A. Crooker, J. Brandt, C. Sandfort, A. Greilich, D. R. Yakovlev, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Bayer // *Physical Review Letters.* — 2010. — Vol. 104. — P. 036601.

[133] *Glasenapp P.* Spin noise of electrons and holes in (In,Ga)As quantum dots: Experiment and theory / P. Glasenapp, D. S. Smirnov, A. Greilich, J. Hackmann, M. M. Glazov, F. B. Anders, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2016. — Vol. 93, no. 20. — P. 205429.

[134] *Smirnov D. S.* Nonequilibrium spin noise in a quantum dot ensemble / D. S. Smirnov, P. Glasenapp, M. Bergen, M. M. Glazov, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Bayer, A. Greilich // *Physical Review B.* — 2017. — Vol. 95, no. 24. — P. 241408.

[135] *Yang L.* Two-colour spin noise spectroscopy and fluctuation correlations reveal homogeneous linewidths within quantum-dot ensembles / L. Yang, P. Glasenapp, A. Greilich, D. Reuter, A. D. Wieck, D. R. Yakovlev, M. Bayer, S. A. Crooker // *Nature Communications.* — 2014. — Vol. 5, no. 1. — P. 4949.

[136] *Cronenberger S.* Spatiotemporal Spin Noise Spectroscopy / S. Cronenberger, C. Abbas, D. Scalbert, H. Boukari // *Physical Review Letters.* — 2019. — Vol. 123, no. 1. — P. 017401.

[137] *Cronenberger S.* Quantum limited heterodyne detection of spin noise / S. Cronenberger, D. Scalbert // *Review of Scientific Instruments.* — 2016. — Vol. 87, no. 9. — P. 093111.

[138] *Petrov M. Y.* Increased sensitivity of spin noise spectroscopy using homodyne detection in n-doped GaAs / M. Y. Petrov, A. N. Kamenskii, V. S. Zapasskii, M. Bayer, A. Greilich // *Physical Review B.* — 2018. — Vol. 97, no. 12. — P. 125202.

[139] *Sterin P.* Optical Amplification of Spin Noise Spectroscopy via Homodyne Detection / P. Sterin, J. Wiegand, J. Hübner, M. Oestreich // *Physical Review Applied.* — 2018. — Vol. 9, no. 3. — P. 034003.

[140] *Poshakinskiy A. V.* Spin noise at electron paramagnetic resonance / A. V. Poshakinskiy, S. A. Tarasenko // *Physical Review B.* — 2020. — Vol. 101, no. 7. — P. 075403.

[141] *Heisterkamp F.* Longitudinal and transverse spin dynamics of donor-bound electrons in fluorine-doped ZnSe: Spin inertia versus Hanle effect / F. Heisterkamp, E. A. Zhukov, A. Greilich, D. R. Yakovlev, V. L. Korenev, A. Pawlis, M. Bayer // *Physical Review B.* — 2015. — Vol. 91, no. 23. — P. 235432.

[142] *Zhukov E. A.* Spin inertia of resident and photoexcited carriers in singly charged quantum dots / E. A. Zhukov, E. Kirstein, D. S. Smirnov, D. R. Yakovlev, M. M. Glazov, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Bayer, A. Greilich // *Physical Review B.* — 2018. — Vol. 98, no. 12. — P. 121304.

[143] *Grigoryev P. S.* Coherent Spin Dynamics of Electrons and Holes in $CsPbBr_3$ Colloidal Nanocrystals / P. S. Grigoryev, V. V. Belykh, D. R. Yakovlev, E. Lhuillier, M. Bayer // *Nano Letters.* — 2021. — Vol. 21, no. 19. — P. 8481–8487.

[144] *Shklovskii B. I.* Electronic Properties of Doped Semiconductors / B. I. Shklovskii, A. L. Efros. — Heidelberg: Springer, 1984.

[145] *Mott N. F.* The Basis of the Electron Theory of Metals, with Special Reference to the Transition Metals / N. F. Mott // *Proceedings of the Physical Society. Section A.* — 1949. — Vol. 62, no. 7. — P. 416–422.

[146] *Mott N. F.* Metal-Insulator Transition / N. F. Mott // *Reviews of Modern Physics.* — 1968. — Vol. 40, no. 4. — P. 677–683.

[147] *Mott N.* Metal-insulator transitions / N. Mott. — London: Taylor & Francis, 1974.

[148] *Anderson P. W.* Absence of Diffusion in Certain Random Lattices / P. W. Anderson // *Physical Review.* — 1958. — Vol. 109, no. 5. — P. 1492–1505.

[149] *Лифшиц И. М.* О структуре энергетического спектра и квантовых состояниях неупорядоченных конденсированных систем / И. М. Лифшиц // *Успехи физических наук.* — 1964. — Т. 83. — С. 617.

[150] *Гантмахер В. Ф.* Электроны в неупорядоченных средах / В. Ф. Гантмахер. — Litres, 2018.

[151] *Römer M.* Electron-spin relaxation in bulk GaAs for doping densities close to the metal-to-insulator transition / M. Römer, H. Bernien, G. Müller, D. Schuh, J. Hübner, M. Oestreich // *Physical Review B.* — 2010. — Vol. 81, no. 7. — P. 075216.

[152] *Furis M.* Bias-dependent electron spin lifetimes in n-GaAs and the role of donor impact ionization / M. Furis, D. L. Smith, S. A. Crooker, J. L. Reno // *Applied Physics Letters.* — 2006. — Vol. 89, no. 10. — P. 102102.

[153] Spin Physics in Semiconductors / Ed. by M. I. Dyakonov. — Cham: Springer International Publishing, 2017.

[154] *Slavcheva G.* Optical Generation and Control of Quantum Coherence in Semiconductor Nanostructures / G. Slavcheva, P. Roussignol. — Berlin: Springer, 2010.

[155] *Greilich A.* Nuclei-induced frequency focusing of electron spin coherence / A. Greilich, A. Shabaev, D. R. Yakovlev, A. L. Efros, I. A. Yugova, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Bayer // *Science (New York, N.Y.).* — 2007. — Vol. 317, no. 5846. — P. 1896.

[156] Intrinsic Properties of Group IV Elements and III-V, II-VI, and I-VII Compounds / Ed. by O. Madelung, Landolt-Bornstein. — New series edition. — Berlin: Springer, 1996. — P. Vol. 22, Pt. A.

[157] *Furis M.* Local Hanle-effect studies of spin drift and diffusion in n:GaAs epilayers and spin-transport devices / M. Furis, D. L. Smith, S. Kos, E. S. Garlid, K. S. M. Reddy, C. J. Palmstrøm, P. A. Crowell, S. A. Crooker // *New Journal of Physics.* — 2007. — Vol. 9, no. 9. — P. 347.

[158] *Vurgaftman I.* Band parameters for III–V compound semiconductors and their alloys / I. Vurgaftman, J. R. Meyer, L. R. Ram-Mohan // *Journal of Applied Physics.* — 2001. — Vol. 58. — P. 5815.

[159] *Adachi S.* Physical Properties of III-V Semiconductor Compounds / S. Adachi. — New York: Wiley, 1992.

[160] *Kiselev A.* Electron g factor in one- and zero-dimensional semiconductor nanostructures / A. Kiselev, E. Ivchenko, U. Rössler // *Physical Review B.* — 1998. — Vol. 58. — P. 16353.

[161] *Pines D.* Relaxation times in magnetic resonance / D. Pines, C. P. Slichter // *Physical Review.* — 1955. — Vol. 100, no. 4. — P. 1014.

[162] *Yang M. J.* Spin-resolved cyclotron resonance in InAs quantum wells: A study of the energy-dependent g factor / M. J. Yang, R. J. Wagner, B. V. Shanabrook, J. R. Waterman, W. J. Moore // *Physical Review B.* — 1993. — Vol. 47, no. 11. — P. 6807.

[163] *de Gennes P.-G.* Sur la relaxation nucleaire dans les cristaux ioniques / P.-G. de Gennes // *Journal of Physics and Chemistry of Solids.* — 1958. — Vol. 7, no. 4. — P. 345–350.

[164] *Abragam A.* Principles of nuclear magnetism / A. Abragam. — Clarendon Press, 1961.

[165] *Dyakonov M.* Spin relaxation of two-dimensional electrons in noncentrosymmetric semiconductors / M. Dyakonov, V. Kachorovskii // *Sov. Phys. Semicond.* — 1986. — Vol. 20. — P. 110.

[166] *Shklovskii B. I.* Dyakonov-Perel spin relaxation near the metal-insulator transition and in hopping transport / B. I. Shklovskii // *Physical Review B.* — 2006. — Vol. 73, no. 19. — P. 193201.

[167] *Altshuler B. L.* Electron-Electron Interactions in Disordered Systems / B. L. Altshuler, A. G. Aronov; Ed. by A. J. Efros, M. Pollak. — Amsterdam: Elsevier, 1985.

[168] *Fritzsche H.* Electrical Properties of p-Type Indium Antimonide at Low Temperatures / H. Fritzsche, K. Lark-Horovitz // *Physical Review.* — 1955. — Vol. 99, no. 2. — P. 400–405.

[169] *Woods J. F.* Negative Magnetoresistance in Impurity Conduction / J. F. Woods, C. Y. Chen // *Physical Review.* — 1964. — Vol. 135, no. 5A. — P. A1462–A1466.

[170] *Halbo L.* Magnetoresistance of Undoped n-Type Gallium Arsenide at Low Temperatures / L. Halbo, R. J. Sladek // *Physical Review.* — 1968. — Vol. 173, no. 3. — P. 794–802.

[171] *Benzaquen M.* Low-field magnetoresistance of n-type GaAs in the variable-range hopping regime / M. Benzaquen, D. Walsh, K. Mazuruk // *Physical Review B.* — 1988. — Vol. 38, no. 15. — P. 10933–10936.

[172] *Kawabata A.* Theory of negative magnetoresistance in three-dimensional systems / A. Kawabata // *Solid State Communications.* — 1980. — Vol. 34, no. 6. — P. 431–432.

[173] *Kawabata A.* Theory of Negative Magnetoresistance I. Application to Heavily Doped Semiconductors / A. Kawabata // *Journal of the Physical Society of Japan.* — 1980. — Vol. 49, no. 2. — P. 628–637.

[174] *Capoen B.* Low-temperature conductivity and weak-localization effect in barely metallic GaAs / B. Capoen, G. Biskupski, A. Briggs // *Journal of Physics: Condensed Matter.* — 1993. — Vol. 5, no. 16. — P. 2545–2552.

[175] *Ivchenko E. L.* Spin relaxation of free carriers in semiconductors without inversion center in longitudinal magnetic field / E. L. Ivchenko // *Fiz. Tverd. Tela.* — 1973. — Vol. 15. — P. 1566.

[176] *Dresselhaus G.* Spin-Orbit Coupling Effects in Zinc Blende Structures / G. Dresselhaus // *Physical Review.* — 1955. — Vol. 100, no. 2. — P. 580.

[177] *Jusserand B.* Spin orientation at semiconductor heterointerfaces / B. Jusserand, D. Richards, G. Allan, C. Priester, B. Etienne // *Physical Review B.* — 1995. — Vol. 51, no. 7. — P. 4707–4710.

[178] *Richards D.* Spin energetics in a GaAs quantum well: Asymmetric spin-flip Raman scattering / D. Richards, B. Jusserand // *Physical Review B.* — 1999. — Vol. 59, no. 4. — P. R2506–R2509.

[179] *Marushchak V. A.* Suppression by a longitudinal magnetic field of spin relaxation of conduction electrons in semiconductor crystals lacking an inversion center / V. A. Marushchak, M. N. Stepanova, A. N. Titkov // *JETP Lett.* — 1983. — Vol. 37. — P. 400.

[180] *Glazov M. M.* Precession spin relaxation mechanism caused by frequent electron-electron collisions / M. M. Glazov, E. L. Ivchenko // *JETP Letters.* — 2002. — Vol. 75, no. 8. — P. 403–405.

[181] *Glazov M. M.* Effect of electron-electron interaction on spin relaxation of charge carriers in semiconductors / M. M. Glazov, E. L. Ivchenko // *Journal of Experimental and Theoretical Physics.* — 2004. — Vol. 99, no. 6. — P. 1279–1290.

[182] *Gor'kov L. P.* Particle conductivity in a two-dimensional random potential / L. P. Gor'kov, A. I. Larkin, D. E. Khmel'nitskiĭ // *JETP Letters.* — 1979. — Vol. 30. — P. 228.

[183] *Emel'yanenko O.* Mechanism for relaxation of the phase of the electron wave function in n-type GaAs / O. Emel'yanenko, T. Lagunova, T. Polyanskaya // *JETP Lett.* — 1982. — Vol. 36. — P. 246.

[184] *Dmitriev A. P.* Nonbackscattering contribution to weak localization / A. P. Dmitriev, V. Y. Kachorovskii, I. V. Gornyi // *Physical Review B.* — 1997. — Vol. 56, no. 15. — P. 9910–9917.

[185] *Isawa Y.* Inelastic Scattering Time in Disordered Metals / Y. Isawa // *Journal of the Physical Society of Japan.* — 1984. — Vol. 53, no. 9. — P. 2865–2867.

[186] *Bychkov Y. A.* Oscillatory effects and the magnetic susceptibility of carriers in inversion layers / Y. A. Bychkov, E. I. Rashba // *J. Phys. C.* — 1984. — Vol. 17. — P. 6039.

[187] *Vas'ko F. T.* Spin splitting in the spectrum of two-dimensional electrons due to the surface potential / F. T. Vas'ko // *Sov. Phys. JETP Lett.* — 1979. — Vol. 30. — P. 541.

[188] *Chekhovich E. A.* Nuclear spin effects in semiconductor quantum dots / E. A. Chekhovich, M. N. Makhonin, A. I. Tartakovskii, A. Yacoby, H. Bluhm, K. C. Nowack, L. M. K. Vandersypen // *Nature Materials.* — 2013. — Vol. 12, no. 6. — P. 494.

[189] *Klitzing K.* New Method for High-Accuracy Determination of the Fine-Structure Constant Based on Quantized Hall Resistance / K. Klitzing, G. Dorda, M. Pepper // *Physical Review Letters.* — 1980. — Vol. 45, no. 6. — P. 494.

[190] *Dickmann S.* Spin-rotation mode in a quantum Hall ferromagnet / S. Dickmann // *Journal of Physics: Condensed Matter.* — 2020. — Vol. 32, no. 1. — P. 015603.

[191] *Kulik L. V.* Magnetofermionic condensate in two dimensions / L. V. Kulik, A. S. Zhuravlev, S. Dickmann, A. V. Gorbunov, V. B. Timofeev, I. V. Kukushkin, S. Schmult // *Nature Communications.* — 2016. — Vol. 7, no. 1. — P. 13499.

[192] *Kulik L. V.* Long-range non-diffusive spin transfer in a Hall insulator / L. V. Kulik, V. A. Kuznetsov, A. S. Zhuravlev, A. V. Gorbunov, V. V. Solovyev, V. B. Timofeev, I. V. Kukushkin, S. Schmult // *Scientific Reports.* — 2018. — Vol. 8, no. 1. — P. 10948.

[193] *Kulik L. V.* Spin transport in the bulk of two-dimensional Hall insulator / L. V. Kulik, A. V. Gorbunov, A. S. Zhuravlev, V. A. Kuznetsov, I. V. Kukushkin // *Applied Physics Letters.* — 2019. — Vol. 114, no. 6. — P. 062403.

[194] *Yakovlev D. R.* II-VI Quantum Wells with High Carrier Densities and in High Magnetic Fields / D. R. Yakovlev, G. V. Astakhov, W. Ossau, S. A. Crooker, A. Waag // Optical Properties of 2D Systems with Interacting Electrons. — Dordrecht: Springer Netherlands, 2003. — P. 137–150.

[195] *Keller D.* Magneto-optics of two-dimensional electron gases modified by strong Coulomb interactions in ZnSe quantum wells / D. Keller, D. R. Yakovlev, G. V. Astakhov, W. Ossau, S. A. Crooker, T. Slobodskyy, A. Waag, G. Schmidt, L. W. Molenkamp // *Physical Review B.* — 2005. — Vol. 72, no. 23. — P. 235306.

[196] *Helander P.* Collisional Transport in Magnetized Plasmas / P. Helander, D. J. Sigmar. — Cambridge: Cambridge University Press, 2002.

[197] *Bohm D.* No Title / D. Bohm // The Characteristics of Electrical Discharges in Magnetic Fields / Ed. by A. Guthrie, R. Wakerling. — New York: McGraw-Hill, 1949. — P. 201.

[198] *Burkov A. A.* Spin relaxation in a two-dimensional electron gas in a perpendicular magnetic field / A. A. Burkov, L. Balents // *Physical Review B.* — 2004. — Vol. 69, no. 24. — P. 245312.

[199] *Lundstrom M.* Fundamentals of Carrier Transport / M. Lundstrom. — Second edition. — Cambridge: Cambridge University Press, 2000.

[200] *Ando T.* Theory of Quantum Transport in a Two-Dimensional Electron System under Magnetic Fields. I. Characteristics of Level Broadening and Transport under Strong Fields / T. Ando, Y. Uemura // *J. Phys. Soc. Jpn.* — 1974. — Vol. 36. — P. 959.

[201] *Raikh M. E.* High Landau levels in a smooth random potential for two-dimensional electrons / M. E. Raikh, T. V. Shahbazyan // *Physical Review B.* — 1993. — Vol. 47, no. 3. — P. 1522.

[202] *Datta S.* Electronic Transport in Mesoscopic Systems / S. Datta. — Cambridge: Cambridge University Press, 1995.

[203] *Yugova I. A.* Universal behavior of the electron g-factor in GaAs/AlGaAs quantum wells / I. A. Yugova, A. Greilich, D. R. Yakovlev, A. A. Kiselev, M. Bayer, V. V. Petrov, Y. K. Dolgikh, D. Reuter, A. D. Wieck // *Physical Review B.* — 2007. — Vol. 75. — P. 245302.

[204] *Dutt M. V. G.* Stimulated and spontaneous optical generation of electron spin coherence in charged GaAs quantum dots / M. V. G. Dutt, J. Cheng, B. Li, X. Xu, X. Li, P. R. Berman, D. G. Steel, A. S. Bracker, D. Gammon, S. E. Economou, R. B. Liu, L. J. Sham // *Physical Review Letters.* — 2005. — Vol. 94. — P. 227403.

[205] *Petta J. R.* Coherent Manipulation of Coupled Electron Spins in Semiconductor Quantum Dots / J. R. Petta // *Science.* — 2005. — Vol. 309, no. 5744. — P. 2180–2184.

[206] *Koppens F. H. L.* Driven coherent oscillations of a single electron spin in a quantum dot / F. H. L. Koppens, C. Buizert, K. J. Tielrooij, I. T. Vink, K. C. Nowack, T. Meunier, L. P. Kouwenhoven, L. M. K. Vandersypen // *Nature.*— 2006.— Vol. 442, no. 7104.— P. 766–771.

[207] *Koppens F. H. L.* Spin Echo of a Single Electron Spin in a Quantum Dot / F. H. L. Koppens, K. C. Nowack, L. M. K. Vandersypen // *Physical Review Letters.*— 2008.— Vol. 100, no. 23.— P. 236802.

[208] *Bluhm H.* Dephasing time of GaAs electron-spin qubits coupled to a nuclear bath exceeding 200 μs / H. Bluhm, S. Foletti, I. Neder, M. Rudner, D. Mahalu, V. Umansky, A. Yacoby // *Nature Physics.*— 2011.— Vol. 7, no. 2.— P. 109–113.

[209] *Stockill R.* Quantum dot spin coherence governed by a strained nuclear environment / R. Stockill, C. Le Gall, C. Matthiesen, L. Huthmacher, E. Clarke, M. Hugues, M. Atatüre // *Nature Communications.*— 2016.— Vol. 7.— P. 12745.

[210] *Danon J.* Nuclear Tuning and Detuning of the Electron Spin Resonance in a Quantum Dot: Theoretical Consideration / J. Danon, Y. V. Nazarov // *Physical Review Letters.*— 2008.— Vol. 100, no. 5.— P. 056603.

[211] *Carter S. G.* Directing Nuclear Spin Flips in InAs Quantum Dots Using Detuned Optical Pulse Trains / S. G. Carter, A. Shabaev, S. E. Economou, T. A. Kennedy, A. S. Bracker, T. L. Reinecke // *Physical Review Letters.*— 2009.— Vol. 102, no. 16.— P. 167403.

[212] *Petrov M. Y.* Coupled electron-nuclear spin dynamics in quantum dots: A graded box model approach / M. Y. Petrov, G. G. Kozlov, I. V. Ignatiev, R. V. Cherbunin, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Physical Review B.*— 2009.— Vol. 80, no. 12.— P. 125318.

[213] *Korenev V. L.* Multiple stable states of a periodically driven electron spin in a quantum dot using circularly polarized light / V. L. Korenev // *Physical Review B.*— 2011.— Vol. 83, no. 23.— P. 235429.

[214] *Barnes E.* Electron-Nuclear Dynamics in a Quantum Dot under Nonunitary Electron Control / E. Barnes, S. E. Economou // *Physical Review Letters.*— 2011.— Vol. 107, no. 4.— P. 047601.

[215] *Glazov M. M.* Electron spin synchronization induced by optical nuclear magnetic resonance feedback / M. M. Glazov, I. A. Yugova, A. L. Efros // *Physical Review B.* — 2012. — Vol. 85, no. 4. — P. 041303.

[216] *Beugeling W.* Quantum model for mode locking in pulsed semiconductor quantum dots / W. Beugeling, G. S. Uhrig, F. B. Anders // *Physical Review B.* — 2016. — Vol. 94, no. 24. — P. 245308.

[217] *Beugeling W.* Influence of the nuclear Zeeman effect on mode locking in pulsed semiconductor quantum dots / W. Beugeling, G. S. Uhrig, F. B. Anders // *Physical Review B.* — 2017. — Vol. 96, no. 11. — P. 115303.

[218] *Schwan A.* Dispersion of electron g-factor with optical transition energy in (In,Ga)As/GaAs self-assembled quantum dots / A. Schwan, B.-M. Meiners, A. B. Henriques, A. D. B. Maia, A. A. Quivy, S. Spatzek, S. Varwig, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Applied Physics Letters.* — 2011. — Vol. 98. — P. 233102.

[219] *Blume R. J.* Electron spin relaxation times in sodium-ammonia solutions / R. J. Blume // *Physical Review.* — 1958. — Vol. 109, no. 6. — P. 1867.

[220] *Gordon J. P.* Microwave Spin Echoes from Donor Electrons in Silicon / J. P. Gordon, K. D. Bowers // *Physical Review Letters.* — 1958. — Vol. 1, no. 10. — P. 368.

[221] *Trifunac A. D.* Optically detected time resolved epr of radical ion pairs in pulse radiolysis of liquids / A. D. Trifunac, J. P. Smith // *Chemical Physics Letters.* — 1980. — Vol. 73, no. 1. — P. 94.

[222] *Mlynek J.* Raman Heterodyne Detection of Nuclear Magnetic Resonance / J. Mlynek, N. C. Wong, R. G. DeVoe, E. S. Kintzer, R. G. Brewer // *Physical Review Letters.* — 1983. — Vol. 50, no. 13. — P. 993.

[223] *Wei C.* Raman heterodyne detected magnetic resonance: I. CW and coherent transient measurements / C. Wei, S. A. Holmstrom, N. B. Manson, J. P. D. Martin, X. F. He, P. T. H. Fisk, K. Holliday // *Applied Magnetic Resonance.* — 1996. — Vol. 11, no. 3-4. — P. 521.

[224] *Martin T.* Layer resolved magnetization dynamics in coupled magnetic films using time-resolved x-ray magnetic circular dichroism with continuous wave excitation / T. Martin, G. Woltersdorf, C. Stamm, H. A. Dürr, R. Mattheis, C. H. Back, G. Bayreuther // *Journal of Applied Physics.* — 2009. — Vol. 105, no. 7. — P. 07D310.

[225] *Marcham M. K.* Phase-resolved x-ray ferromagnetic resonance measurements in fluorescence yield / M. K. Marcham, P. S. Keatley, A. Neudert, R. J. Hicken, S. A. Cavill, L. R. Shelford, G. van der Laan, N. D. Telling, J. R. Childress, J. A. Katine, P. Shafer, E. Arenholz // *Journal of Applied Physics.* — 2011. — Vol. 109, no. 7. — P. 07D353.

[226] *Mocek R. W.* High-efficiency optical pumping of nuclear polarization in a GaAs quantum well / R. W. Mocek, V. L. Korenev, M. Bayer, M. Kotur, R. I. Dzhioev, D. O. Tolmachev, G. Cascio, K. V. Kavokin, D. Suter // *Physical Review B.* — 2017. — Vol. 96, no. 20. — P. 201303.

[227] *Glazov M. M.* Resonant spin amplification in nanostructures with anisotropic spin relaxation and spread of the electronic g factor / M. M. Glazov, E. L. Ivchenko // *Semiconductors.* — 2008. — Vol. 42, no. 8. — P. 951–957.

[228] *De Greve K.* Ultrafast coherent control and suppressed nuclear feedback of a single quantum dot hole qubit / K. De Greve, P. L. McMahon, D. Press, T. D. Ladd, D. Bisping, C. Schneider, M. Kamp, L. Worschech, S. Höfling, A. Forchel, Y. Yamamoto // *Nature Physics.* — 2011. — Vol. 7, no. 11. — P. 872.

[229] *Carr H. Y.* Effects of diffusion on free precession in nuclear magnetic resonance experiments / H. Y. Carr, E. M. Purcell // *Physical Review.* — 1954. — Vol. 94, no. 3. — P. 630.

[230] *Meiboom S.* Modified spin-echo method for measuring nuclear relaxation Times / S. Meiboom, D. Gill // *Review of Scientific Instruments.* — 1958. — Vol. 29, no. 8. — P. 688.

[231] *Viola L.* Dynamical suppression of decoherence in two-state quantum systems / L. Viola, S. Lloyd // *Physical Review A.* — 1998. — Vol. 58, no. 4. — P. 2733.

[232] *Feher G.* Electron Spin Resonance Experiments on Donors in Silicon. II. Electron Spin Relaxation Effects / G. Feher, E. A. Gere // *Physical Review.* — 1959. — Vol. 114, no. 5. — P. 1245–1256.

[233] *Dirksen P.* An ESR hole burning study of dynamic nuclear polarisation of 29 Si in Si:B / P. Dirksen, A. Henstra, W. T. Wenckebach // *Journal of Physics: Condensed Matter.* — 1989. — Vol. 1, no. 44. — P. 8535–8541.

[234] *Gurin A. S.* Combined EPR and ODMR study of Ce^{3+} optical emitters in yttrium aluminium garnet / A. S. Gurin, D. D. Kramushchenko, Y. A. Uspenskaya, G. R. Asatryan,

A. G. Petrosyan, D. O. Tolmachev, N. G. Romanov, P. G. Baranov // *Journal of Physics: Conference Series.* — 2015. — Vol. 661. — P. 012039.

[235] *Kostić S.* Study of structural and optical properties of YAG and Nd:YAG single crystals / S. Kostić, Z. Lazarević, V. Radojević, A. Milutinović, M. Romčević, N. Romčević, A. Valčić // *Materials Research Bulletin.* — 2015. — Vol. 63. — P. 80–87.

[236] *Lewis H. R.* Paramagnetic resonance of Ce^{3+} in Yttrium Aluminum Garnet / H. R. Lewis // *Journal of Applied Physics.* — 1966. — Vol. 37, no. 2. — P. 739.

[237] *Przybylińska H.* Electronic structure of Ce^3+ multicenters in yttrium aluminum garnets / H. Przybylińska, C.-G. Ma, M. G. Brik, A. Kamińska, P. Sybilski, A. Wittlin, M. Berkowski, Y. Zorenko, V. Gorbenko, H. Wrzesinski, A. Suchocki // *Applied Physics Letters.* — 2013. — Vol. 102, no. 24. — P. 241112.

[238] *Zych E.* Kinetics of cerium emission in a YAG:Ce single crystal: the role of traps / E. Zych, C. Brecher, J. Glodo // *Journal of Physics: Condensed Matter.* — 2000. — Vol. 12, no. 8. — P. 1947.

[239] *Brog K. C.* ^{27}Al and ^{89}Y nuclear magnetic resonance in yttrium-aluminum garnet / K. C. Brog, W. H. Jones, C. M. Verber // *Physics Letters.* — 1966. — Vol. 20, no. 3. — P. 258.

[240] *Liang P.* Room-temperature electron spin dynamics of Ce^{3+} ions in a YAG crystal / P. Liang, R. R. Hu, C. Chen, V. V. Belykh, T. Q. Jia, Z. R. Sun, D. H. Feng, D. R. Yakovlev, M. Bayer // *Applied Physics Letters.* — 2017. — Vol. 110, no. 22. — P. 222405.

[241] *Kirstein E.* Spin dynamics of electrons and holes interacting with nuclei in $MAPbI_3$ perovskite single crystals / E. Kirstein, D. R. Yakovlev, E. A. Zhukov, J. Höcker, V. Dyakonov, M. Bayer // *ACS Photonics.* — 2022. — Vol. 9, no. 4. — P. 1375.

[242] *Alger R.* Electron paramagnetic resonance: techniques and applications / R. Alger. — New York: Interscience Publishers, 1968.

[243] *Poole C.* Electron spin resonance: a comprehensive treatise on experimental techniques / C. Poole. — 2nd edition. — New York: Dover Publications, 1996.

[244] *Herve J.* Résonance Paramagnétique — Mesure du temps de relaxation T_1 par modulation du champ radiofréquence H1 et détection de variation d'aimantation selon le champ director / J. Herve, J. Pescia // *Compt. Rend. Acad. Sci.* — 1960. — Vol. 251. — P. 665.

[245] *Misra S.* Microwave amplitude modualtion technique to measure spin-lattice and spin-spin (T_2) relaxation times / S. Misra // Computational and Instrumental Methods in EPR / Ed. by C. J. Bender, L. J. Berliner. — New York: Springer-Verlag, 2006.