



ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ
ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ И НАУКИ

**САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ
АКАДЕМИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ ИМЕНИ Ж.И. АЛФЕРОВА
РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК**

« 04 » июня 20 26 г.

Зав. каф. Функциональных микро-
и наноматериалов

 д.ф.-м.н. А.А. Липовский

**ИССЛЕДОВАНИЕ СПЕКТРАЛЬНЫХ, ПОЛЯРИЗАЦИОННЫХ И
КИНЕТИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ СПИНОВЫХ
СТЁКОЛ CdMnTe**

Магистерская диссертация

Направление 03.04.02 Физика

Антипенко Алексей Анатольевич

Научный руководитель

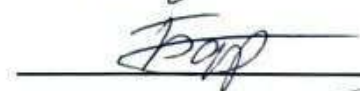
к.ф.-м.н., н.с.

Рецензент

к.ф.-м.н., н.с.

Студент гр. 601

 Н.В. Козырев

 К.А. Барышников

 А.А. Антипенко

Санкт-Петербург, 2026

ОГЛАВЛЕНИЕ

Вступление.....	2
ГЛАВА 1. ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ	4
1.1. Разбавленные магнитные полупроводники (РМП).....	4
1.2. Гигантское спиновое расщепление (ГСР) в РМП	7
1.3. Внутрицентровая фотолюминесценция (ВФЛ).....	9
1.4. Каналы релаксации фотовозбуждения	12
1.5. Спиновое стекло	14
ГЛАВА 2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА	20
2.1. Исследуемый образец.....	20
2.2. Описание экспериментальной установки	21
ГЛАВА 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ	25
3.1. Поляризованная фотолюминесценция $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ в магнитном поле в геометрии Фарадея.....	25
3.2. Кинетики затухания фотолюминесценции $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ и её степени циркулярной поляризации.....	28
3.3. Обсуждение результатов.....	33
Заключение	42
Список используемых источников.....	43

ВСТУПЛЕНИЕ

Исследование спектральных, поляризационных и кинетических особенностей спиновых стёкол на основе разбавленных магнитных полупроводников, таких как CdMnTe и других $A^{\text{II}}\text{MnB}^{\text{VI}}$, обладает высокой фундаментальной [1–4] и практической актуальностью [5–11]. С фундаментальной точки зрения, спиновые стёкла являются моделью сложных систем с «энергетическим ландшафтом» [12], имеющим множество минимумов. Их изучение помогает понять универсальные принципы, применимые далеко за пределами магнетизма и спинтроники. Практический интерес к этой теме обусловлен перспективами создания электронных устройств нового поколения. Понимание спиновой динамики в $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ открывает путь к элементам спинтроники, где информация переносится спинами, а не зарядами, что предвещает революционное снижение энергопотребления [13].

Сильное обменное взаимодействие между d-электронами ионов марганца и зонными носителями заряда в разбавленных магнитных полупроводниках приводит к ряду ярких эффектов, которые не наблюдаются в немагнитных материалах. Одним из таких эффектов является гигантское зеемановское расщепление, которое вызвано колоссальной перенормировкой g-фактора (квантовомеханический аналог гиромагнитного соотношения) носителей заряда в зонах.

В рамках дипломной работы исследованы спектры фотолюминесценции и её степени циркулярной поляризации разбавленного магнитного полупроводника $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ при двух различных энергиях фотовозбуждения: при межзонном фотовозбуждении с энергией фотонов 3.05 эВ и при резонансном фотовозбуждении в полосу внутрицентральной фотолюминесценции марганца с энергией фотонов 1.96 эВ. Также были исследованы кинетики затухания фотолюминесценции и кинетики магнитоиндуцированной циркулярной

поляризации фотолюминесценции. Исследования проводились при температуре 1.5 К в магнитном поле в геометрии Фарадея до 6 Тл.

В ходе данной работы было обнаружено широкое разнообразие ярких эффектов, наблюдаемых в $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ в состоянии спинового стекла при температуре жидкого гелия в магнитном поле в геометрии Фарадея: наличие антистоксовой экситонной фотолюминесценции при резонансном фотовозбуждении в полосу внутрицентральной фотолюминесценции марганца (энергия излучения на 240 мэВ превышала энергию фотовозбуждения); отсутствие зеемановского расщепления циркулярно-поляризованных компонент экситонной фотолюминесценции при резонансном фотовозбуждении в полосу внутрицентральной фотолюминесценции марганца; в кинетиках затухания экситонной фотолюминесценции было обнаружено, что её интенсивность определяется двумя экспоненциально затухающими вкладками. Также, была выдвинута гипотеза о том, что полоса экситонной фотолюминесценции при межзонном фотовозбуждении с энергией фотонов 3.05 эВ состоит из двух полос, соответствующих двум различным сортам экситонов, отличающихся областью локализации. Эти полосы связаны с наблюдаемыми в кинетиках экситонной фотолюминесценции экспоненциально затухающими компонентами.

ГЛАВА 1. ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ

1.1. Разбавленные магнитные полупроводники (РМП)

Разбавленные магнитные полупроводники (РМП) – также известные как полумагнитные полупроводники – это полупроводниковые твёрдые растворы, в которых часть атомов катионной подрешётки замещена магнитными атомами. Материалы типа $A^{II}B^{IV}$, легированные ионами марганца представляют особый интерес по нескольким причинам. В частности, меняя концентрацию ионов марганца в широких пределах можно добиться перехода от состояния парамагнетика в состояние спинового стекла при низких температурах [14; 15], обнаруженные в этом состоянии эффекты хорошо описаны в работах [16–19]. Также, ионы марганца, замещающие катионы в таких материалах, выступают эффективными электролюминофорами, что, в свою очередь, открывает возможность использования $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$ в качестве светодиодов со спиновой инжекцией для оптических дисплеев [20]. Более того, благодаря наличию локализованных магнитных ионов в РМП возникает сильное обменное взаимодействие s-электронов в зоне проводимости или p-электронов в валентной зоне с d-электронами марганца. Это взаимодействие приводит к ряду ярких эффектов, таких как гигантское Зеемановское расщепление электронных уровней в зонах [14].

Помимо прочего, материалы $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$ служат отличными кандидатами для создания квантовых ям, сверхрешёток и других низкоразмерных структур благодаря возможности варьирования ширины запрещённой зоны и параметра решётки за счёт изменения концентрации марганца.

В таблице 1.1 приведены различные варианты сплавов $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$, типы их кристаллических решёток и соответствующий диапазон допустимых концентраций. Для $Cd_{1-x}Mn_xTe$ формируется сплав с кристаллической решёткой типа цинковой обманки с концентрацией вплоть до 0.77, в то время как для $Zn_{1-x}Mn_xSe$ структура цинковой обманки проявляется при концентрациях $x < 0.30$,

если же концентрация находится в диапазоне $0.30 < x < 0.55$, то наблюдается кристаллическая решётка типа вюрцита.

Таблица 1.1

$A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$ разбавленные магнитные полупроводники [14]

Материал	Тип кристаллической решётки	Диапазон концентраций
$Zn_{1-x}Mn_xS$	Цинковая обманка	$0 < x \leq 0.10$
	Вюрцит	$0.10 < x \leq 0.45$
$Zn_{1-x}Mn_xSe$	Цинковая обманка	$0 < x \leq 0.30$
	Вюрцит	$0.30 < x \leq 0.57$
$Zn_{1-x}Mn_xTe$	Цинковая обманка	$0 < x \leq 0.86$
$Cd_{1-x}Mn_xS$	Вюрцит	$0 < x \leq 0.45$
$Cd_{1-x}Mn_xSe$	Вюрцит	$0 < x \leq 0.50$
$Cd_{1-x}Mn_xTe$	Цинковая обманка	$0 < x \leq 0.77$
$Hg_{1-x}Mn_xS$	Цинковая обманка	$0 < x \leq 0.37$
$Hg_{1-x}Mn_xSe$	Цинковая обманка	$0 < x \leq 0.38$
$Hg_{1-x}Mn_xTe$	Цинковая обманка	$0 < x \leq 0.75$

Интересно отметить, что допустимые концентрации x могут достигать достаточно высоких значений, несмотря на тот факт, что тип кристаллической решётки соединений $MnTe$, MnS и $MnSe$ не соответствует ни цинковой обманке, ни вюрциту [21].

Такая хорошая растворимость марганца в $A^{II}B^{VI}$ полупроводниках по сравнению с другими атомами переходных металлов, гипотетически связана с тем, что его $3d$ -оболочка заполнена именно на половину [14]. $3d^5$ -оболочка имеет химические свойства подобные полностью заполненной оболочке, как, например, $4d^{10}$ -оболочка кадмия, при этом, $4s^2$ -оболочка марганца, образует $s-p^3$ связи. Таким образом, атомы марганца ведут себя как двухвалентные примеси и

легко замещают элементы второй группы в соединениях $A^{II}B^{VI}$. В добавок, в согласии с правилом Хунда все спины электронов на этой оболочке выстроены параллельно, и чтобы добавить электрон с противоположно направленным спином на эту оболочку, потребуется энергия порядка 6-7 эВ [22; 23]. Именно благодаря этому марганец легчайшим образом замещает атомы второй группы в соединениях $A^{II}B^{VI}$.

Зонные структуры $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$ РМП и $A^{II}B^{VI}$ материалов крайне схожи между собой из-за одинаковой кристаллической решётки. А именно, такие полупроводниковые сплавы являются прямозонными с экстремумами зон в Γ -точке (рисунок 1.1).

Ширина запрещённой зоны меняется с ростом концентрации примеси x . В частности, для $Cd_{1-x}Mn_xTe$ при увеличении концентрации x марганца на 0.01, ширина запрещённой зоны увеличивается на величину приблизительно 15 мэВ [24].

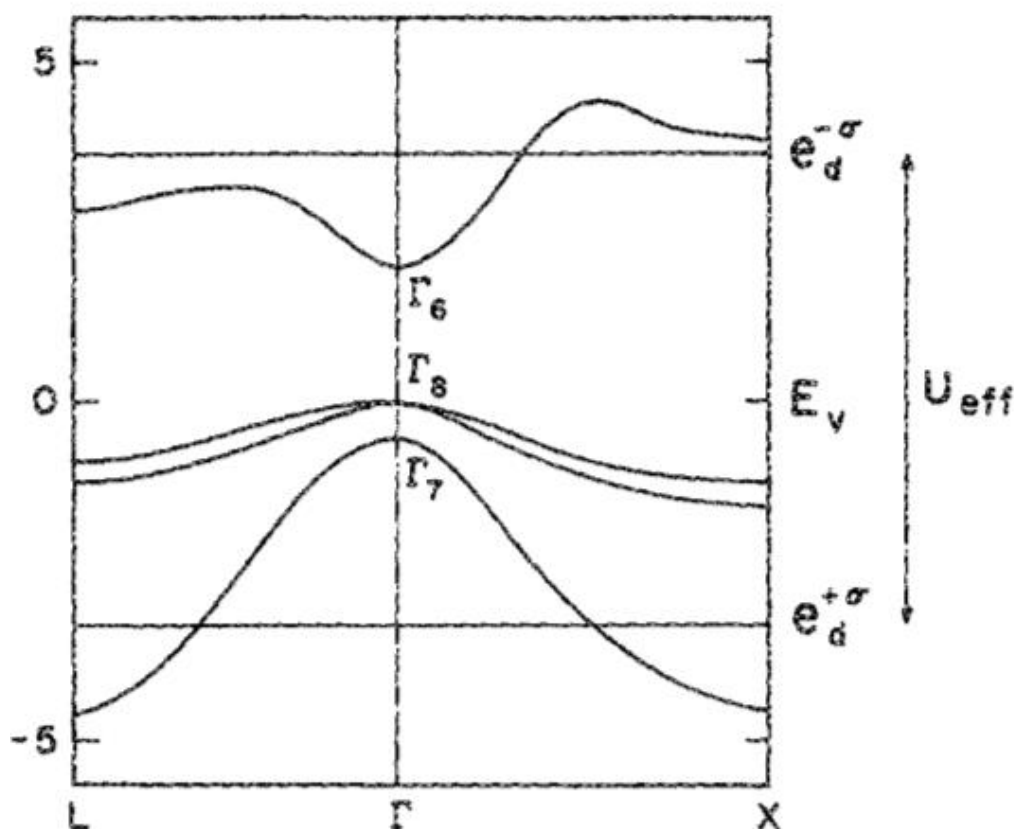


Рисунок 1.1. Зонная структура РМП $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$ типа цинковой обманки [14].

1.2. Гигантское спиновое расщепление (ГСР) в РМП

Все магнитные явления, имеющие место в $A_{1-x}^{II}Mn_xB^{VI}$, являются следствием s/p-d обменного взаимодействия электронов в валентной зоне или зоне проводимости и d-электронами, локализованными вблизи ионов Mn^{2+} . Учитывая, что электрон в зоне проводимости (валентной зоне) может быть делокализован по множеству элементарных ячеек кристалла и перекрываться волновыми функциями сразу с несколькими ионами марганца, можно записать гамильтониан для такого взаимодействия в предложенном Гейзенбергом виде:

$$\hat{H}_{\text{exch}} = \sum_i J^{s/p-d}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) \hat{\mathbf{s}}_e \cdot \hat{\mathbf{S}}_{Mn,i}, \quad (1.1)$$

Уравнение (1.1) означает, что один электрон в зоне проводимости (или валентной зоне) имеющий спин $\hat{\mathbf{s}}_e$ и координату $\mathbf{r}$, взаимодействует с несколькими ионами Mn^{2+} (i – индекс каждого такого иона), имеет спин $\hat{\mathbf{S}}_{Mn,i}$ и локализован в точке $\mathbf{R}_i$. Величина такого взаимодействия определяется обменным интегралом $J^{s/p-d}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i)$, который соответствует перекрытию волновой функции электрона в зоне с i -тым ионом марганца. Суммирование ведётся по всем узлам кристаллической решётки, которые содержат ион Mn^{2+} .

С целью упрощения вида гамильтониана (1.1) можно воспользоваться приближением виртуального кристалла и приближением среднего поля. Оба этих приближения базируются на том факте, что электрон в зоне проводимости (валентной зоне) может быть делокализован по большому числу элементарных ячеек и может взаимодействовать с множеством ионов марганца. Приближение виртуального кристалла гласит, что каждый катион кристаллической структуры: ион марганца или ион второй группы, можно представить в виде некоего «гибридного» катиона, совмещающего в себе немагнитные свойства иона второй группы и магнитные свойства иона Mn^{2+} . Это приближение позволяет вести суммирование в уравнении (1.1) по всем узлам катионной подрешётки, находящимся в положении $\mathbf{R}$ (определяются векторами трансляции), а

содержание марганца в твёрдом растворе учесть его мольной концентрацией x_{Mn} – процентным соотношением количества марганца к количеству всех катионов. Иными словами, каждый катион теперь — ион марганца, но сила обменного взаимодействия уменьшена в меру концентрации x_{Mn} .

$$\hat{H}_{\text{exch}} = x_{\text{Mn}} \sum J^{s/p-d} (\mathbf{r} - \mathbf{R}) \hat{\mathbf{s}}_e \cdot \hat{\mathbf{S}}_{\text{Mn}} . \quad (1.2)$$

Приближение среднего поля гласит, что взаимодействие электрона с каждым конкретным спином $\hat{\mathbf{S}}_{\text{Mn}}$ по отдельности можно заменить взаимодействием его с термодинамическим средним значением спина всех ионов марганца $\langle \mathbf{S}_{\text{Mn}} \rangle$, который пропорционален намагниченности системы ионов марганца M .

$$\hat{H}_{\text{exch}} = x_{\text{Mn}} \hat{\mathbf{s}}_e \langle \mathbf{S}_{\text{Mn}} \rangle \sum J^{s/p-d} (\mathbf{r} - \mathbf{R}) \quad (1.3)$$

Для нахождения значений энергии электрона необходимо диагонализировать гамильтониан (1.3), матричные элементы которого могут быть найдены при помощи блоховских амплитуд волновых функций электрона (дырки), получаемых для немагнитного родительского полупроводника. Такой подход возможен, поскольку гамильтониан (1.3) имеет ту же трансляционную симметрию, что и гамильтониан родительского кристалла. Рассмотрев случай, когда магнитное поле направлено вдоль оси $\mathbf{z}$, гамильтониан переписывается как:

$$\hat{H}_{\text{exch}} = x_{\text{Mn}} \hat{\mathbf{s}}_{e,z} \langle \mathbf{S}_{\text{Mn},z} \rangle \sum J^{s/p-d} (\mathbf{r} - \mathbf{R}) \quad (1.4)$$

Величина среднего спина парамагнитной системы ионов марганца $\langle \mathbf{S}_{\text{Mn}} \rangle$ определяется величиной внешнего магнитного поля B и температурой T как [4]:

$$\langle \mathbf{S}_{\text{Mn}} \rangle = SB_S \left(\frac{\mu_B g_{\text{Mn}} SB}{k_B T} \right), \quad (1.5)$$

где $S = 5/2$ – спин иона марганца, μ_B – магнетон Бора, $g_{\text{Mn}} = 2$ – g -фактор d -электронов марганца, k_B – постоянная Больцмана, $B_S(x)$ – функция Бриллюэна,

определяющая поляризацию системы квантовых частиц со спином S , и определяемая как:

$$B_s(x) = \frac{2S+1}{2S} \operatorname{cth}\left(\frac{2S+1}{2S}x\right) - \frac{1}{2S} \operatorname{cth}\left(\frac{1}{2S}x\right). \quad (1.6)$$

Согласно (1.5), с ростом магнитного поля средний спин системы ионов марганца увеличивается и стремится к насыщению. При этом в малых магнитных полях ($\mu_B g_{Mn} SB / k_B T \ll 1$) поведение среднего спина линейно по полю. Применяя разложение (1.6) в ряд Тейлора вблизи $x = 0$ до линейного члена – $B_s(x) \approx \frac{S+1}{3S}x$ – энергетический сдвиг от магнитного поля за счёт s/p-d обменного взаимодействия становится линейным по магнитному полю, и его можно записать в виде, похожем на эффект Зеемана:

$$E_{\Gamma_6, m_s} = m_s x_{Mn} N_0 \alpha \frac{S+1}{3S} \frac{\mu_B g_{Mn} SB}{k_B T} = m_s \mu_B g^* B. \quad (1.7)$$

Значение «обменного» g-фактора g^* уже для малых концентраций марганца может в сотни раз превышать значение g-фактора в немагнитном родительском полупроводнике (порядка единицы). Расщепление электронных состояний в следствие такой значительной перенормировки g-фактора называют Гигантским Зеемановским Расщеплением или Гигантским Спиновым Расщеплением [25].

1.3. Внутрицентровая фотолюминесценция (ВФЛ)

РМП $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$, как уже было сказано, являются крайне эффективными фото- и электролюминофорами, благодаря внутрицентровым d-d оптическим переходам в ионах марганца [14; 26].

Для иона Mn^{2+} находящегося в тетраэдрическом окружении анионной подрешётки в кристалле $A^{II}B^{VI}$ возможные d-d переходы представлены в виде

схемы термов на рисунке 1.2. В пустом пространстве (левая часть рисунка 1.2) основному состоянию соответствует спиновый секстет 6S (со спиновым числом $S = 5/2$ и орбитальным числом $L = 0$), слабо подверженный влиянию кристаллического поля. Низшим возбуждённым состоянием соответствуют термы с $S = 3/2$ и $L = 1, 2, 3, 4$, причём наименьшую по величине энергию имеет терм 4G с $L = 4$. В кристаллическом тетраэдрическом поле терм 4G расщепляется на четыре уровня (правая часть рисунка 1.2). Уровень 4T_1 оказывается нижним, так как его энергия значительно уменьшается с ростом поля, тогда как уровни A и E на изменение поля реагируют слабо.

В дополнение к вышесказанному, энергетическое расстояние между уровнями 4T_1 и 6A_1 в $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$ полупроводниках составляет 2 – 2.2 эВ [26]. Для CdTe при температуре жидкого гелия ширина запрещённой зоны равна $E_g = 1.6$ эВ. Таким образом, для наблюдения внутрицентральной люминесценции необходимы достаточно высокие концентрации марганца в $Cd_{1-x}Mn_xTe$ (примерно $x = 0.40$).

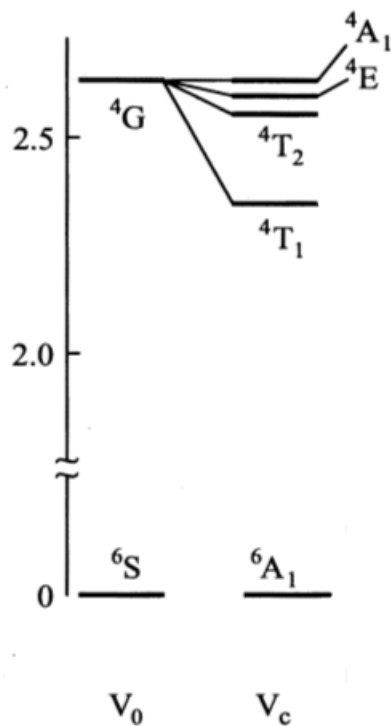


Рисунок 1.2. Энергетическая структура уровней энергии атома Mn^{2+} [26].

V_0 – уровни энергии свободного иона;

V_c – уровни энергии иона в кристаллическом поле.

По оптическим спектрам определить положение уровней 3d-оболочки относительно экстремумов зонных состояний трудно, но отсутствие чётко выраженных переходов с уровня 6A_1 в зону проводимости во множестве изученных кристаллов $A^{II}B^{VI}$ с примесью марганца, свидетельствует о том, что этот уровень, лежит ниже потолка валентной зоны, образованной p-состоянием халькогенидов [26]. Наибольший интерес для нас представляет пик, соответствующий переходу из 4T_1 состояния в состояние 6A_1 . В материалах с достаточной шириной запрещённой зоны ($E_g > 2.2$ эВ) наблюдается ВФЛ, соответствующая оптическому d-d переходу ${}^4T_1 \rightarrow {}^6A_1$, типичный спектр которой для $Zn_{0.96}Mn_{0.04}S$ показан на рисунке 1.3.

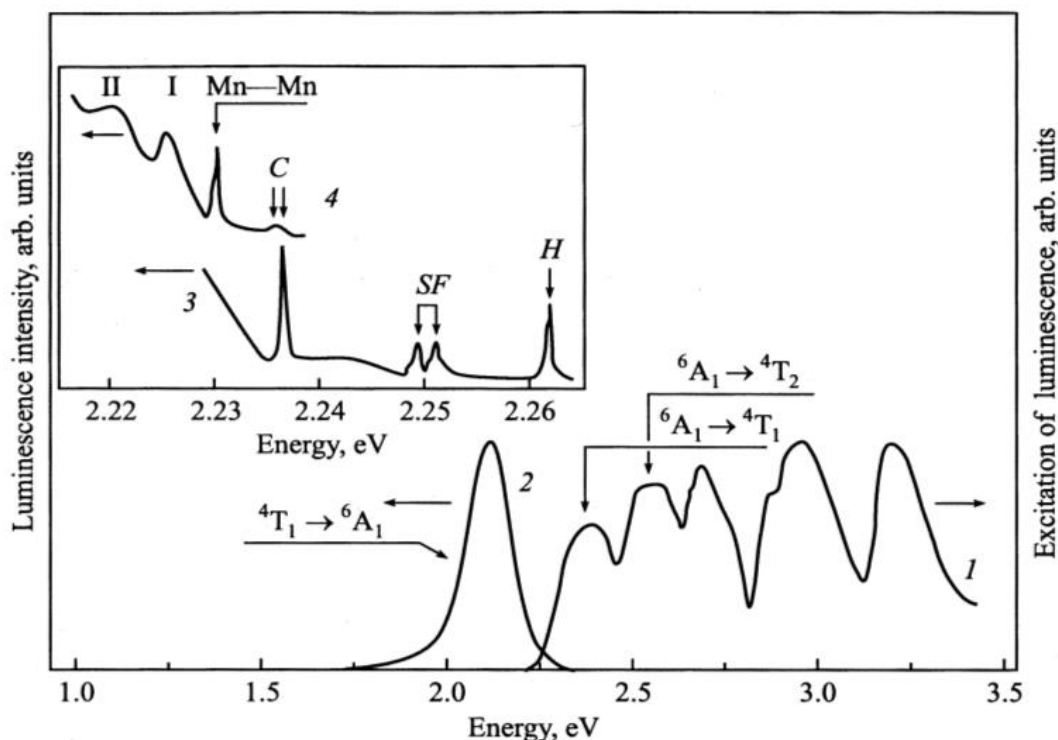


Рисунок 1.3. Внутрицентровое поглощение и ВФЛ Mn^{2+} в кристалле $Zn_{0.96}Mn_{0.04}S$ [26].

При резонансном оптическом фотовозбуждении d-d перехода марганца в состояние 4T_1 d-электроны сильно локализованы вблизи центра иона марганца, в

отличие от межзонных оптических переходов из валентной зоны в зону проводимости, в которых волновая функция перекрывает множество элементарных ячеек и имеет место сильная делокализация. Это приводит к тому, что у обратных d-d переходов у электронного возбуждения эффективно существует только один канал релаксации – излучательный. Это обуславливает большую эффективность ВФЛ $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$.

Также, важно отметить, что переходы между уровнями 3d-оболочки являются интеркомбинационными, и в электрическом дипольном приближении, вообще говоря, запрещены. Однако, тетраэдрическое окружение анионами в кристалле, частично снимает запрет на такие переходы [26].

1.4. Каналы релаксации фотовозбуждения

В системах, где ширина запрещённой зоны больше, чем энергия ВФЛ, при межзонном фотовозбуждении существует два основных канала релаксации полученной энергии в соединениях типа $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$: экситонная фотолюминесценция и передача энергии на возбуждение внутрицентровых d-d переходы ионов марганца (также имеют место каналы безызлучательной релаксации). В зависимости от конкретного материала, энергии фотовозбуждения, концентрации примеси и наличия и величины внешнего магнитного поля эти каналы проявляются по-разному.

В частности, речь пойдёт о так называемом запрете передачи энергии от экситонов (межзонных оптических переходов) ионам марганца (внутрицентровым переходам) в магнитном поле. Изучению этого явления было посвящено некоторое количество работ [6; 27]. Модель, предложенная в статье [28] качественно описывает явление (рисунок 1.4).

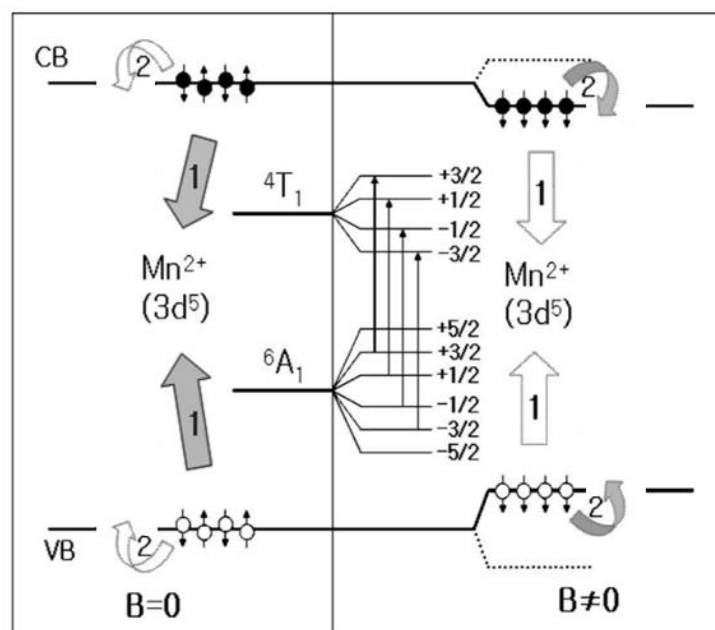


Рисунок 1.4. Диаграмма возможных каналов релаксации [28].

Стрелками с цифрой «один» проиллюстрирован канал энергетической релаксации, соответствующий передаче энергии от экситонов (электронно-дырочных пар, связанных кулоновским взаимодействием) на возбуждение внутрицентровых переходов марганца, с последующей ВФЛ, а стрелочкой с цифрой «два» – экситонная фотолюминесценция. Левая половина диаграммы показывает процессы при отсутствии внешнего магнитного поля, правая – соответствует ненулевому внешнему магнитному полю.

Когда внешнего поля нет, спины электронов и дырок в зонах направлены хаотично. Основной канал релаксации полученного фотовозбуждения – передача энергии на возбуждение d-d переходов марганца по механизму Оже, с последующей внутрицентральной фотолюминесценцией ионов марганца. При этом, интенсивность экситонной фотолюминесценции низкая (т.е. этот канал реализуется с меньшей вероятностью). Все законы сохранения выполняются.

Ситуация в корне меняется с появлением внешнего магнитного поля. Спины электронов становятся поляризованы по направлению поля из-за эффекта гигантского зеемановского расщепления (такой эффект ярко проявляется при температуре жидкого гелия) [14; 29]. И в этом случае, для ВФЛ закон сохранения

спиновой проекции уже не может быть выполнен. Формула, описывающая закон сохранения:

$$\mu + \sigma = \mu' + \sigma', \quad (1.8)$$

где μ и μ' – проекция спина марганца в состоянии 6A_1 и 4T_1 , соответственно; σ и σ' – проекция спина электрона в зоне проводимости и в валентной зоне, соответственно.

При переходе электрона из зоны проводимости в валентную зону, проекция его спина сохраняется. То есть, из закона сохранения проекции спина следует вывод о том, что и для марганца проекция спина так же должна сохраняться. Но в состоянии 6A_1 спин марганца составляет $5/2$, а в состоянии 4T_1 спин равен $3/2$. А так как при температуре жидкого гелия, уже в поле порядка 1 Тл ионы марганца в состоянии 6A_1 преимущественно заселяют состояние с проекцией спина $+5/2$, выходит, что переход из состояния 6A_1 в состояние 4T_1 , равно как и переход из 4T_1 в состояние 6A_1 , во внешнем магнитном поле запрещён. Таким образом, этот канал релаксации значительно ослабевает с появлением внешнего магнитного поля, что приводит к разгоранию межзонной фотолюминесценции.

1.5. Спиновое стекло

Говоря о концентрации марганца в РМП, нельзя не упомянуть о некоторых особых фазовых состояниях веществ, а именно, состоянии спинового стекла. При достаточно больших значениях концентрации ($x > 0.19$ для $Cd_{1-x}Mn_xTe$ [14; 15], и низких температурах (порядка 10 К) происходит переход в состояние спинового стекла. При таких концентрациях ионы марганца не могут не взаимодействовать друг с другом, более того, концентрация достаточно велика, чтобы один ион марганца ощущал присутствие по меньшей мере двух других ионов. Предпочтительно для них было бы антиферромагнитное упорядочение спинов, но геометрическое расположение ионов марганца в кластерах из трёх и

более ионов в решётке типа цинковой обманки не даёт возможность сформироваться такому магнитному порядку. Вследствие этого спины ионов марганца фрустрируют и застывают в произвольном направлении, теряя возможность к ориентации магнитным полем.

Известно, что переход из парамагнитной фазы в состояние спинового стекла сопровождается пиком магнитной восприимчивости при температуре соответствующей температуре стеклования T_f в переменном магнитном поле [15; 30]. Также, существуют работы, посвящённые остаточной намагниченности, которые свидетельствуют о крайне медленной спиновой динамике ниже температуры стеклования T_f [31].

Процесс формирования спинового стекла в материале может быть трактован в терминах кластеризации [32], где при определённых условиях формируются разные типы Микроскопических Спиновых Состояний (МСС): конечные, закрытые/замкнутые, бесконечные кластеры и свободные спины. Важно отметить, что формирование кластеров в парамагнитной фазе начинается при температурах $T \leq 5T_f$, согласно [33].

На рисунке 1.5 представлено схематичное представление процесса образования спинового стекла с понижением температуры, основанное на магнитных измерениях [14]. Верхняя левая панель схемы отражает распределение МСС в температурном диапазоне $3T_f < T < 5T_f$, когда в парамагнитной фазе существуют свободные спины и небольшие кластеры, содержащие пары, тройки и т.д. ближайших соседей (отмечены красными точками) наряду с конечными парамагнитными кластерами, состоящими из десятков ионов марганца, характеризующимися собственным магнитным моментом в десятки магнетонов Бора (жёлтые круги)). Верхняя правая панель демонстрирует МСС в диапазоне $T_f < T < 3T_f$, где в результате межкластерного взаимодействия начинают возникать закрытые кластеры (зелёные круги), представляющие собой конгломераты закрытых кластеров, магнитные моменты которых взаимодействуют меж собой. В этом температурном диапазоне

конкурируют три вида взаимодействия: межкластерное, внутрикластерное и температурное разупорядочивание.

Левая нижняя панель соответствует $T \approx T_f$. При температуре стеклования, подобно паутине, начинает разрастаться бесконечный кластер (группа синих кругов), являя собой результат межкластерного взаимодействия между закрытыми кластерами. В то же время, свободные спины, так же как и открытые кластеры всё ещё могут давать некоторый вклад в общий парамагнитный отклик системы. Нижняя правая панель показывает распределение МСС при температуре ниже температуры стеклования $T < T_f$. В таких условиях бесконечный кластер продолжает разрастаться, поглощая оставшиеся конечные кластеры. Небольшое число свободных спинов и малых конечных кластеров продолжают существовать, но их число сокращается с понижением температуры.

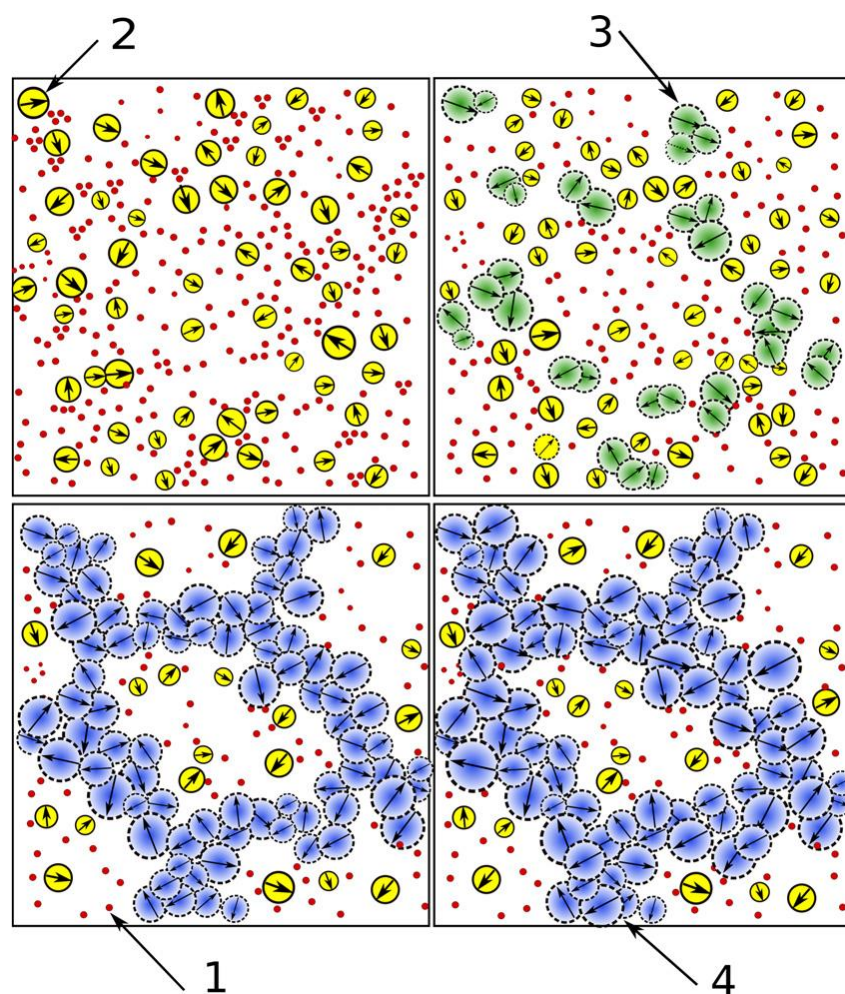


Рисунок 1.5. Схематичное изображение эволюции во времени ММСС и формирование состояния спинового стекла (стрелки 1-4 показывают свободные спины, конечные, закрытые и бесконечные кластеры соответственно) [34].

Одним из ярких эффектов, проявляющихся в спиновом стекле, является формирование магнитных поляронов, связанных с дырками, локализованными на акцепторах. Их возникновение — результат сильного обменного взаимодействия экситонов (возбуждённых светом электрон-дырочных пар, связанных кулоновским взаимодействием), и магнитных моментов одиночных ионов (свободные спины) или других спиновых кластеров [35].

Формирование связанных магнитных поляронов в РМП обусловлено сильным обменным p - d взаимодействием локализованной дырки с ионами Mn^{2+} . После локализации экситона на нейтральном акцепторе в системе возникает локализованная дырка, волновая функция которой сосредоточена вблизи примесного центра. Обменное p - d взаимодействие между дыркой и спинами Mn

приводит к энергетически выгодной частичной ориентации спинов магнитных ионов в области локализации дырки.

Гамильтониан такого взаимодействия можно записать в виде [36]:

$$\hat{H}_{\text{exch}} = -\beta \sum_i |\psi(\mathbf{R}_i)|^2 \mathbf{j} \mathbf{S}_i \quad (1.9)$$

где β – константа обменного взаимодействия валентной зоны, $\psi(\mathbf{R}_i)$ – огибающая волновая функция дырки в точке расположения i -го иона Mn, $\mathbf{j}$ – угловой момент дырки, а $\mathbf{S}_i$ – спин иона Mn^{2+} . Поскольку плотность вероятности локализованной дырки максимальна вблизи акцептора, обменное поле также максимально в этой области, что приводит к возникновению локальной области коррелированных спинов Mn. Таким образом, связанный магнитный полярон представляет собой квазичастицу, состоящую из локализованного носителя и индуцированной им области локального магнитного упорядочения. При больших концентрациях марганца различные локальные конфигурации магнитных ионов начинают давать широкий набор поляронных энергий, вследствие чего спектральная линия, соответствующая люминесценции экситонов, локализованных на акцепторах, теряет чёткую структуру [36].

При дальнейшем увеличении концентрации марганца локальные связанные магнитные поляроны перестают быть независимыми объектами. Области спиновых корреляций, индуцированные локализованными носителями, начинают перекрываться, а взаимодействие Mn-Mn становится сопоставимым по величине с обменным взаимодействием носителей и магнитных ионов. В этом режиме магнитная подсистема уже не может рассматриваться как совокупность независимых локальных поляронных областей. Вместо этого формируется коллективная магнитно-коррелированная среда со сложной пространственно неоднородной структурой спинов.

Поскольку взаимодействие между ионами Mn в $\text{A}^{\text{II}}\text{B}^{\text{VI}}$ РМП носит преимущественно антиферромагнитный характер, а расположение магнитных

ионов является случайным, в системе возникает фрустрация обменных взаимодействий. Это приводит к формированию состояния спинового стекла, в котором отсутствует дальний магнитный порядок, однако сохраняются замороженные пространственные спиновые корреляции. Таким образом, переход к состоянию спинового стекла при больших концентрациях марганца можно рассматривать как результат коллективизации и перекрытия локальных поляронных корреляций, возникающих на более низких концентрациях магнитной примеси.

ГЛАВА 2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

2.1. Исследуемый образец

Исследуемый образец представляет из себя РМП $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$, выращенный методом Чохральского. Данная система имеет структуру цинковой обманки (рисунок 2.1) и ширину запрещённой зоны $E_g = 2.2$ эВ при температуре жидкого гелия.

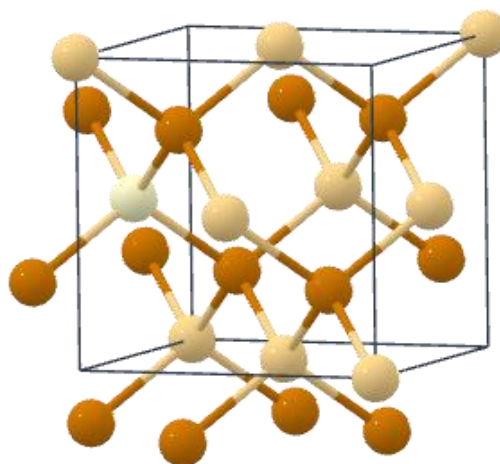


Рисунок 2.1. Элементарная ячейка CdTe, бежевые и рыжие шарики соответствуют атомам кадмия и теллура соответственно (случайные катионы заменяются ионами марганца).

Для проведения эксперимента, образец был помещён в конверт (сам образец можно увидеть через апертуру в центре конверта) и закреплён на специальный держатель (рисунок 2.2), после чего, помещён внутрь криостата. Охлаждение образца проводилось в отсутствие магнитного поля и фотовозбуждения.

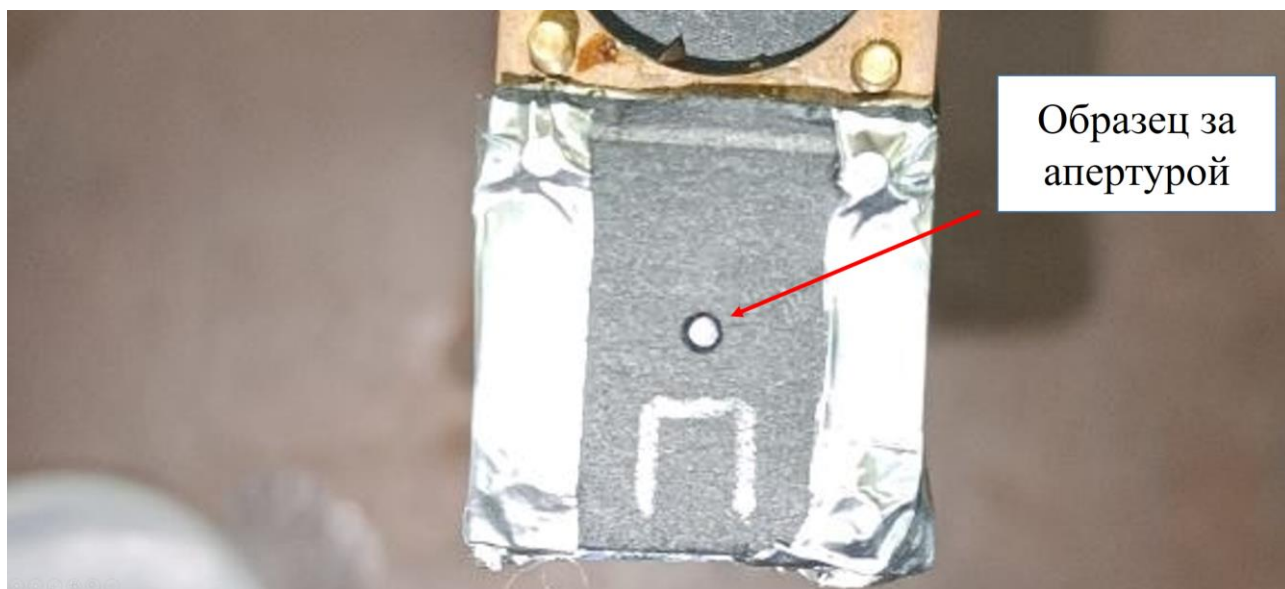


Рисунок 2.2. $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$, закреплённый на держателе, перед помещением в криостат.

2.2. Описание экспериментальной установки

В ходе исследования спектральных, поляризационных и кинетических особенностей спинового стекла на основе РМП использовались методы поляризованной фотолюминесценции и время-разрешённой фотолюминесценции (Time-Resolved Photoluminescence).

Исследуемый образец помещался в гелиевый криостат с температурной вставкой и сверхпроводящим магнитом, позволяющими регулировать температуру в диапазоне от 1.5 К до 300 К и магнитное поле в геометрии Фарадея (исследования фотолюминесценции вдоль направления магнитного поля) в диапазоне от 0 Тл до 6 Тл.

Схематичное изображение экспериментальной установки для метода поляризованной фотолюминесценции представлена на рисунке 2.3.

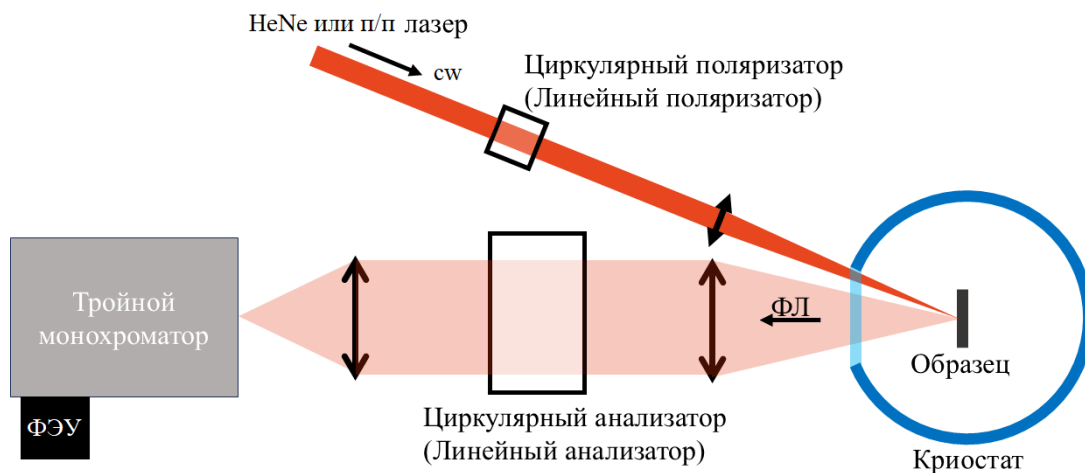


Рисунок 2.3. Схема экспериментальной установки для исследования поляризованной фотолюминесценции.

В качестве источника фотовозбуждения были использованы два лазера: гелий-неоновый с энергией фотонов 1.96 эВ для возбуждения внутрицентровых оптических d-d переходов марганца и полупроводниковый лазер для межзонного фотовозбуждения с энергией фотонов 3.05 эВ. Мощность накачки в измерениях без поляризационной оптики составляла $P_{\text{exc}} = 18$ мВт; с использованием поляризационной оптики: $P'_{\text{exc}} = 8$ мВт. Лазерное излучение пропусклось через линейный поляризатор для создания линейно-поляризованного фотовозбуждения; или через линейный поляризатор и четверть-волновую пластинку, оси которых были наклонены относительно друг друга под углом $+45^\circ$ или -45° для создания право- (σ^+) или лево-циркулярно-поляризованного (σ^-) фотовозбуждения. Далее лазерное излучение фокусировалось на образце с помощью собирающей линзы в пятно диаметром 300 мкм. Детектирование фотолюминесценции образца производилось при помощи тройного монохроматора с общим спектральным разрешением 50 мкэВ и фотоэлектронного умножителя (ФЭУ). Поляризационный состав вторичного излучения детектировался при помощи анализатора циркулярной поляризации – кварцевый фотоупругий модулятор и линейный поляризатор (призму Глана).

Для данной длины волны света она зависит от напряжения, подаваемого на пьезокварц. Последний включен в обратную связь генератора. В системе возникают резонансные колебания. Благодаря большой добротности, легко достигается разность фаз равная $\pi/2$. Таким образом, с высокой частотой (~ 30 кГц и больше) можно модулировать степень циркулярной поляризации проходящего света. Устанавливая после кварцевого модулятора линейный поляризатор, с осью, направленной под 45 градусов к оси модулятора, получаем анализатор циркулярной поляризации.

Исследования время-разрешённой фотолюминесценции проводились с помощью установки, схематично изображённой на рисунке 2.5. В качестве источников фотовозбуждения были использованы два полупроводниковых лазера с энергиями фотонов 1.96 эВ и 3.05 эВ в режиме генерации импульсов с частотой следования 1 МГц. Средняя мощность накачки составляла $P_{\text{exc}} = 1.6$ мВт. Лазерное излучение фокусировалось на образце в пятно диаметром 300 мкм.

Температура внутри камеры с образцом на протяжении всех измерений поддерживалась на уровне $T = 1.5$ К.

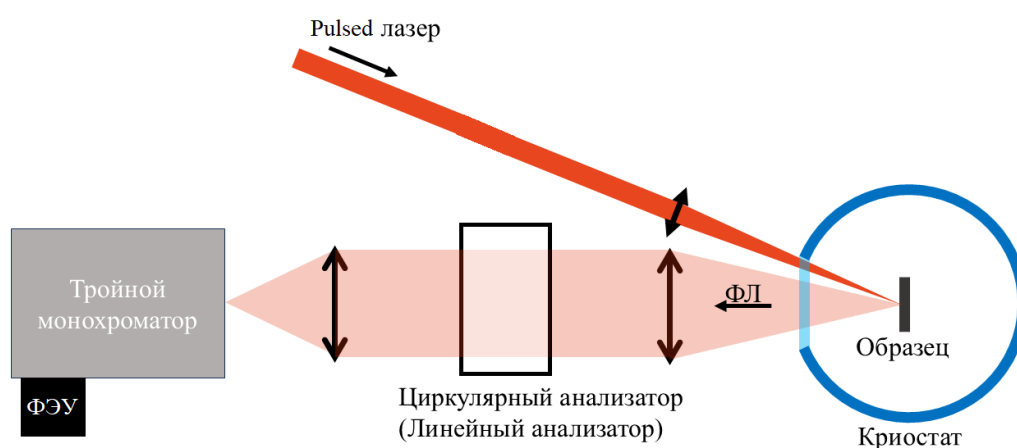


Рис. 2.5. Схематичное изображение установки для исследования время-разрешённой фотолюминесценции.

ГЛАВА 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Поляризованная фотолюминесценция $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ в магнитном поле в геометрии Фарадея

На рисунке 3.1 изображены спектры фотолюминесценции объёмного $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ в состоянии спинового стекла при температуре 1.5 К при межзонном фотовозбуждении с энергией фотонов 3.06 эВ, и при резонансном оптическом возбуждении внутрицентровых переходов ионов марганца с энергией фотонов 1.96 эВ.

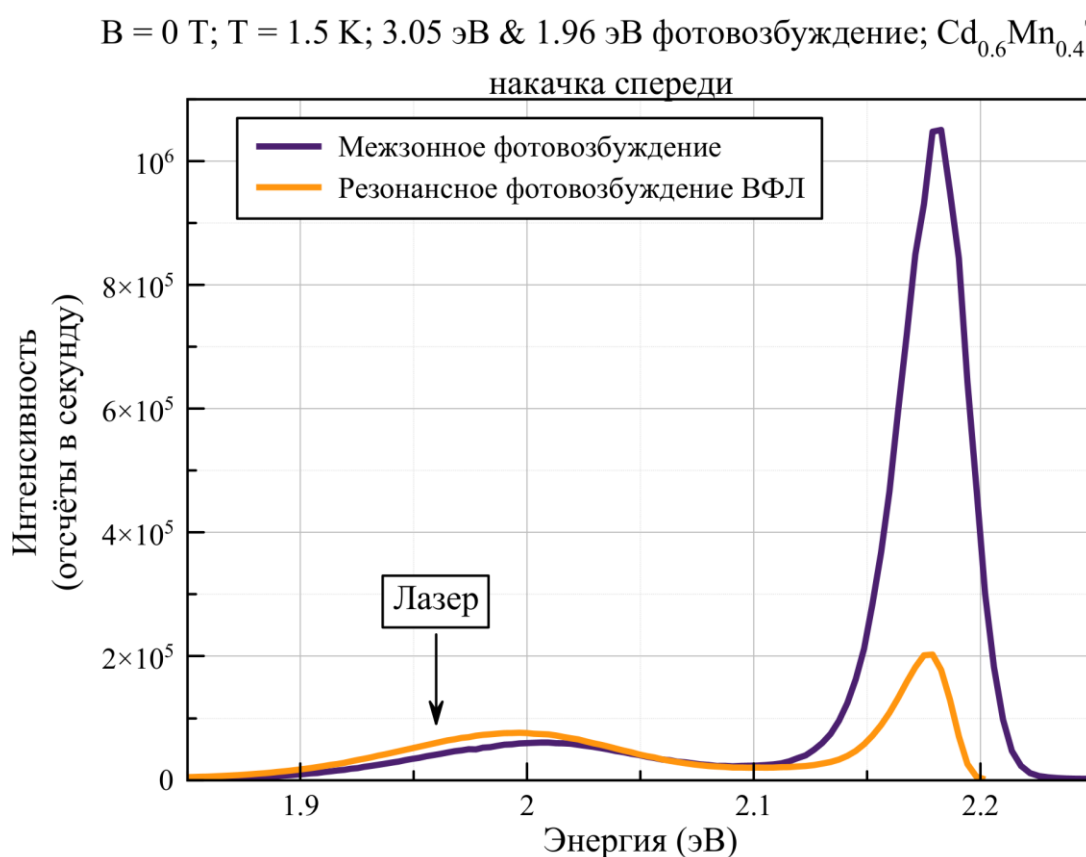


Рисунок 3.1. Сравнение спектров фотолюминесценции $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ при температуре 1.5 К при межзонном и резонансном фотовозбуждении.

При межзонном фотовозбуждении светом с энергией фотонов 3.05 эВ в спектре излучения наблюдается полоса внутрицентральной фотолюминесценции (ВФЛ) марганца, с максимумом излучения на энергии 2 эВ шириной на

полувысоте 100 мэВ, и полоса экситонной фотолюминесценции (ЭФЛ), с максимумом на 2.17 эВ и шириной на полувысоте 35 мэВ.

При фотовозбуждении светом с энергией фотонов 1.96 эВ – резонансно в полосу внутрицентральной фотолюминесценции марганца – наблюдается яркий эффект: с высокоэнергетичной стороны от лазера наблюдается антистоксова ЭФЛ, полоса которой обрывается на энергии 2.20 эВ. Значимым является то, что в таких условиях, энергия излучаемых фотонов превышает энергию фотовозбуждения до 340 мэВ, что сильно больше тепловой энергии (0.13 мэВ при $T = 1.5$ К), ответственной за обычно наблюдаемую антистоксову фотолюминесценцию, связанную с тепловым увеличением энергии экситонов. Такая колоссальная энергия ЭФЛ при низкоэнергетичном фотовозбуждении может быть связана с двухступенчатыми процессами поглощения света ионами марганца. Замечено, что при межзонном фотовозбуждении полоса ЭФЛ излучается до энергий 2.22 эВ.

В магнитном поле в геометрии Фарадея, при межзонном фотовозбуждении полоса ЭФЛ испытывает расщепление на две циркулярно-поляризованные компоненты (рисунок 3.2), достигающее 15 мэВ в поле 6 Тл. Обе полосы сдвигаются в магнитном поле в область низких энергий, что является необычным так как за счёт эффекта Зеемана, полосы циркулярно-поляризованной ФЛ должны испытывать энергетический сдвиг в разные стороны. На коротковолновом краю спектра ФЛ имеет стопроцентную степень циркулярной поляризации. При этом степень поляризации меняется по спектру до 80% с уменьшением энергии детектирования, а полоса излучения марганца неполяризована. Из-за сильной фрустрации системы спинов ионов марганца, внешнее магнитное поле слабо влияет на их ориентацию, в отличие от парамагнитных систем, где концентрация ионов марганца около 1% [37].

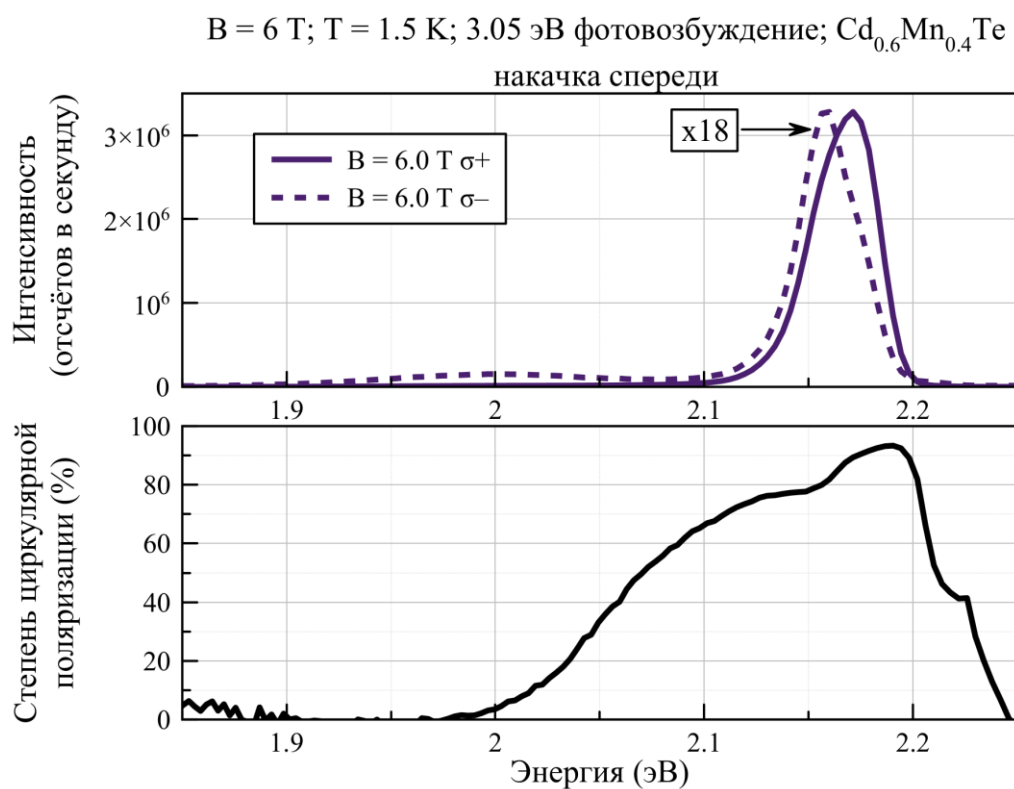


Рисунок 3.2. Спектр фотолюминесценции $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ и её поляризации в магнитном поле 6 Тл в геометрии Фарадея при температуре 1.5 К.

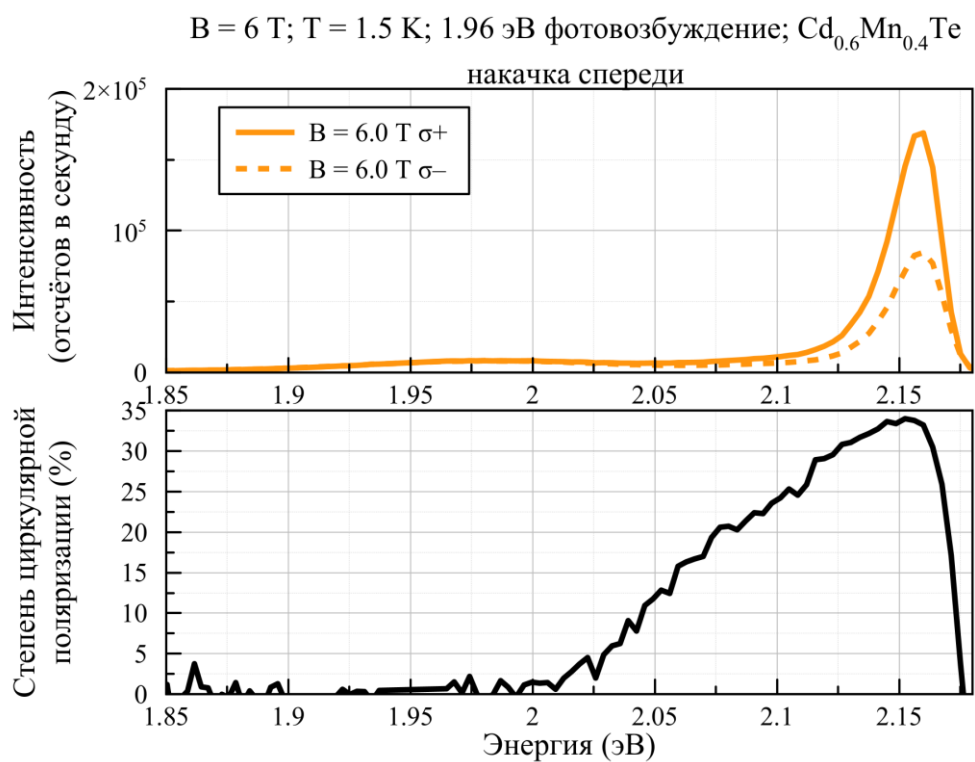


Рисунок 3.3. Спектр фотолюминесценции $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ и её поляризации в магнитном поле 6 Тл в геометрии Фарадея при температуре 1.5 К.

При возбуждении светом с энергией фотонов 1.96 эВ (рисунок 3.3) расщепление ЭФЛ не наблюдается, и степень её циркулярной поляризации достигает всего 35% в поле 6 Тл. Однако её компоненты сдвигаются в область низких энергий так же, как и σ^- поляризованная полоса ЭФЛ, полученная при межзонном фотовозбуждении.

3.2. Кинетики затухания фотолюминесценции $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ и её степени циркулярной поляризации

Кинетики фотолюминесценции при межзонном и резонансном фотовозбуждении на различных энергиях детектирования были получены в нулевом магнитном поле и магнитном поле 1 Тл в геометрии Фарадея при температуре 1.5 К (рисунки 3.4; 3.5).

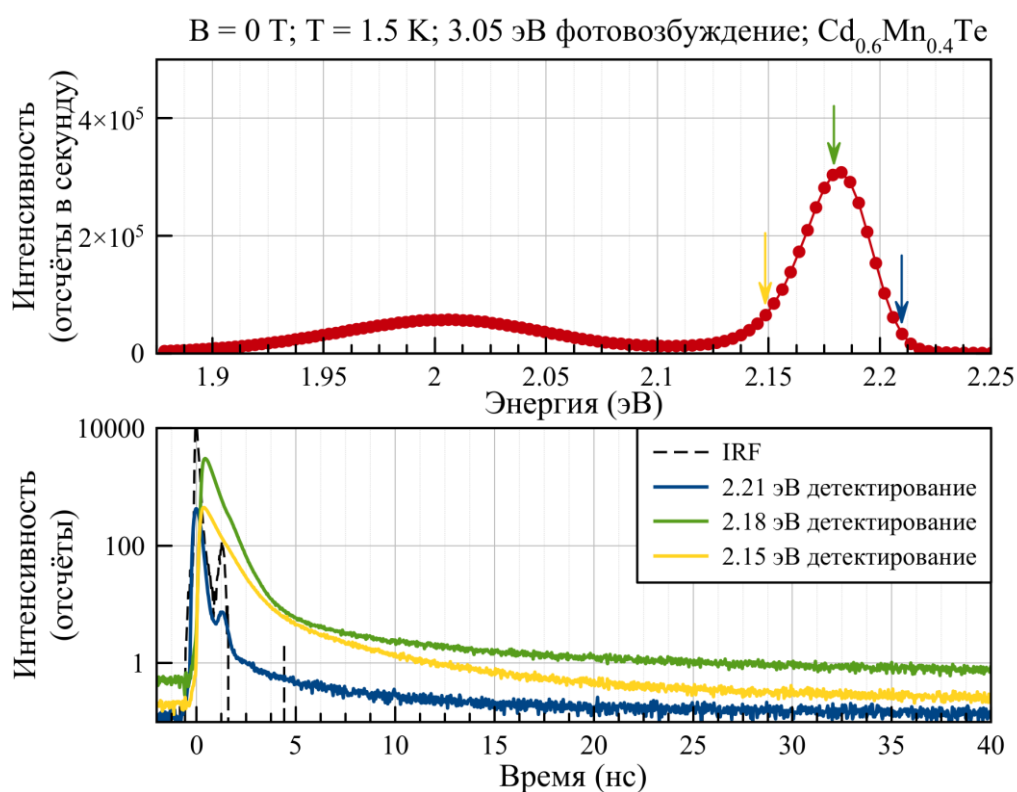


Рисунок 3.4. Кинетики затухания фотолюминесценции $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ на разных энергиях детектирования при межзонном фотовозбуждении при температуре 1.5 К.

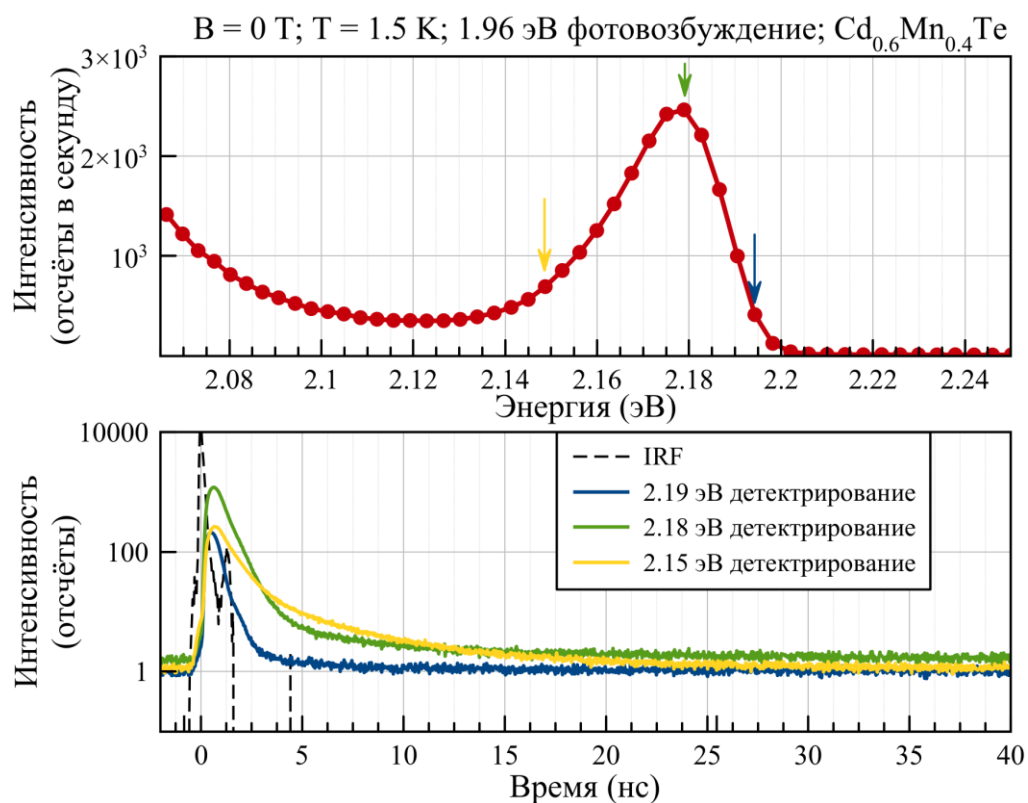


Рисунок. 3.5. Кинетики затухания фотолюминесценции $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ на разных энергиях детектирования при резонансном фотовозбуждении в полосу ВФЛ марганца при температуре 1.5 К.

Было обнаружено, что при детектировании излучения полосы ЭФЛ наблюдается две экспоненциально затухающие компоненты (рисунок 3.6.): короткоживущая, со временем затухания порядка 1 нс и долгоживущая – со временем затухания около 6 нс.

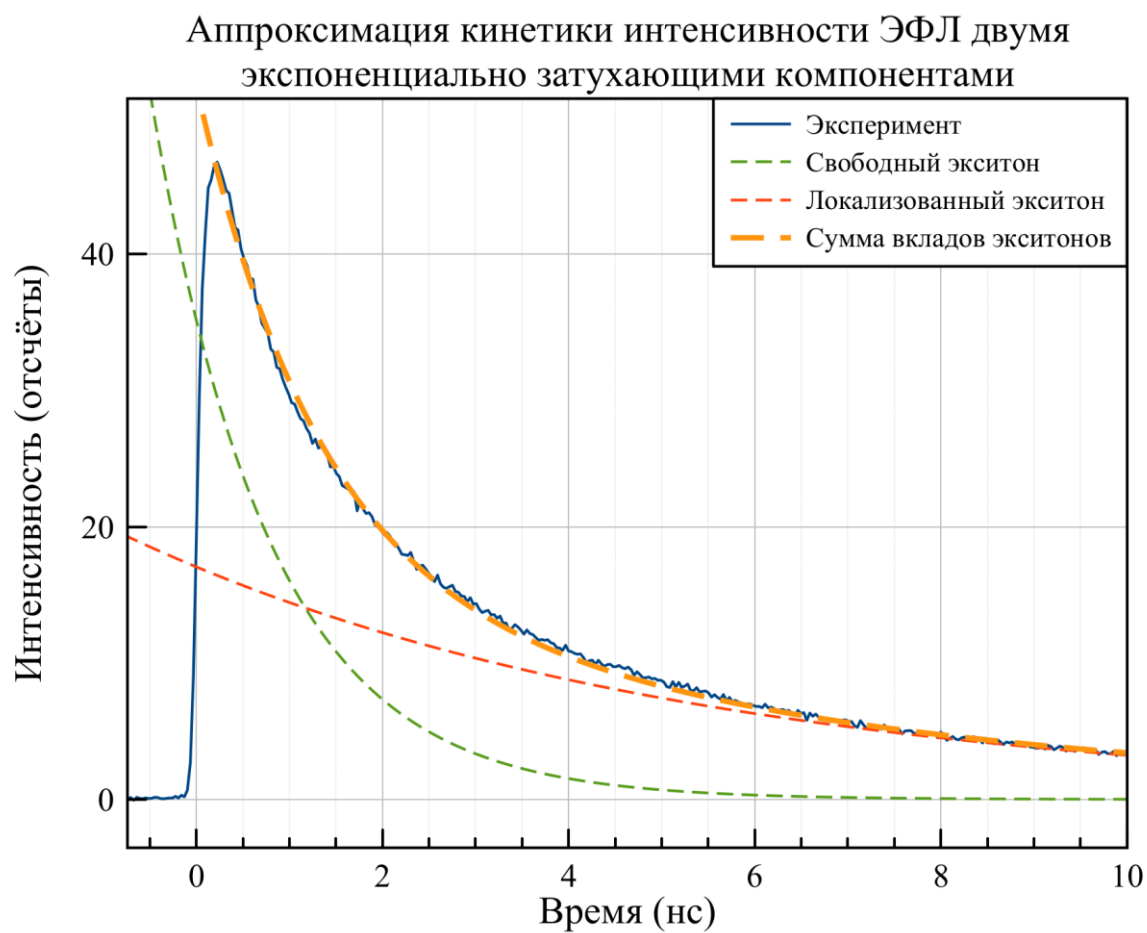


Рисунок 3.6. Аппроксимация экспериментально полученной кинетики интенсивности ЭФЛ двумя экспоненциально затухающими компонентами (свободный экситон и локализованный экситон).

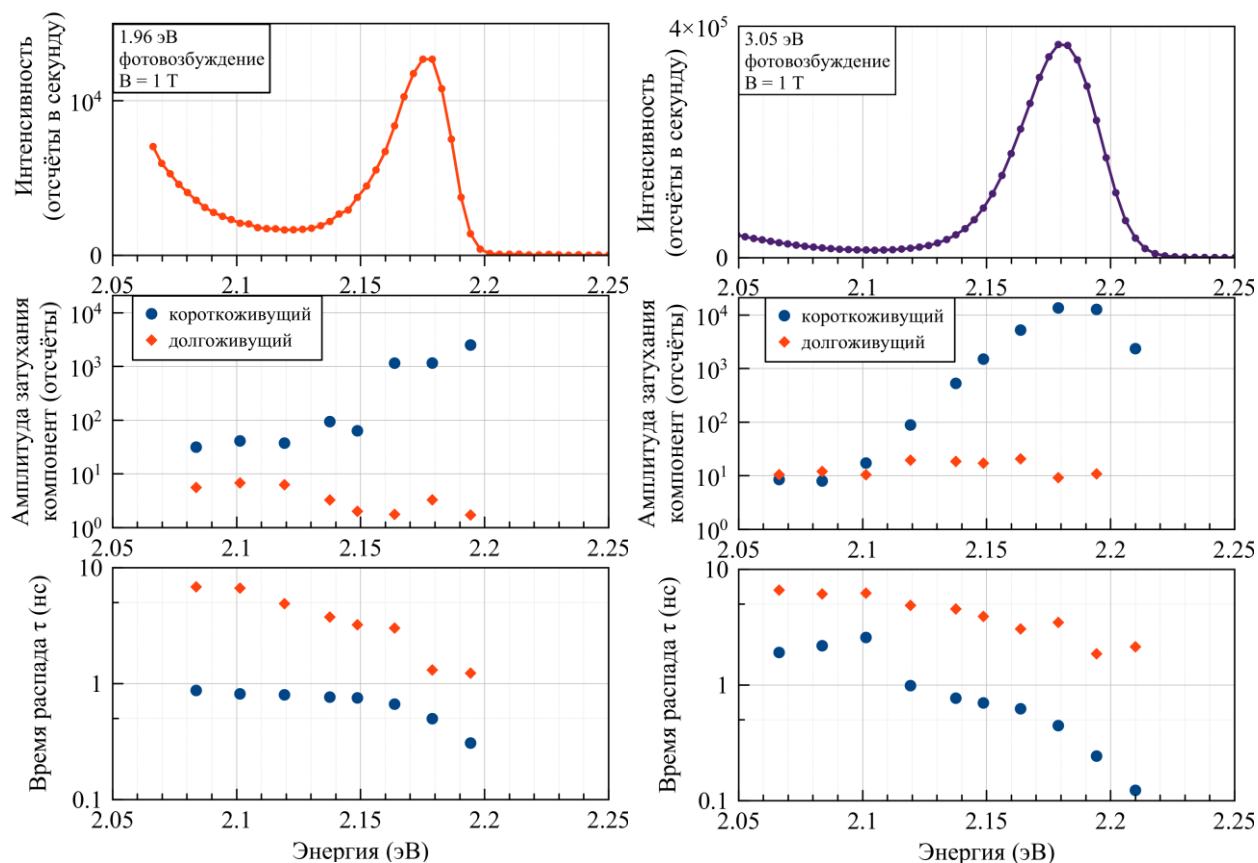


Рисунок 3.7. Графики распада экспоненциально затухающих компонент кинетики ФЛ $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ на разных энергиях детектирования в магнитном поле 1 Тл в геометрии Фарадея при температуре 1.5 К.

С уменьшением энергии детектирования наблюдается возрастание времени затухания короткоживущей компоненты кинетики фотолюминесценции от 0.1 нс до 1 нс, что говорит о процессах быстрой энергетической релаксации экситонов, сопровождающейся локализациях на неоднородностях потенциала в твёрдом растворе (рисунок 3.7). Время затухания долгоживущей компоненты так же возрастает с уменьшением энергии детектирования от 1 нс до 8 нс. Также, на энергиях детектирования до 2.1 эВ проявляется компонента с сильно большим временем жизни (не меньше десятков мкс), которая соответствует внутрицентральной фотолюминесценции марганца. Как можно заметить, на энергии детектирования 2.07 эВ время затухания долгоживущей компоненты кинетики фотолюминесценции не превышает 8 нс, что может говорить о том, что

детектируемое излучение соответствует экситонной фотолюминесценции, а не внутрицентровым переходам. Объясняет столь длительное для экситона время жизни, предположительно, очень малая (возможно квантоворазмерная) область локализации, которая приводит к уменьшению перекрытия волновых функций электрона и дырки в экситоне.

С целью оценить времена спиновой релаксации экситонов были построены и проанализированы кинетики магнитоиндуцированной циркулярной поляризации фотолюминесценции (рисунок 3.8).

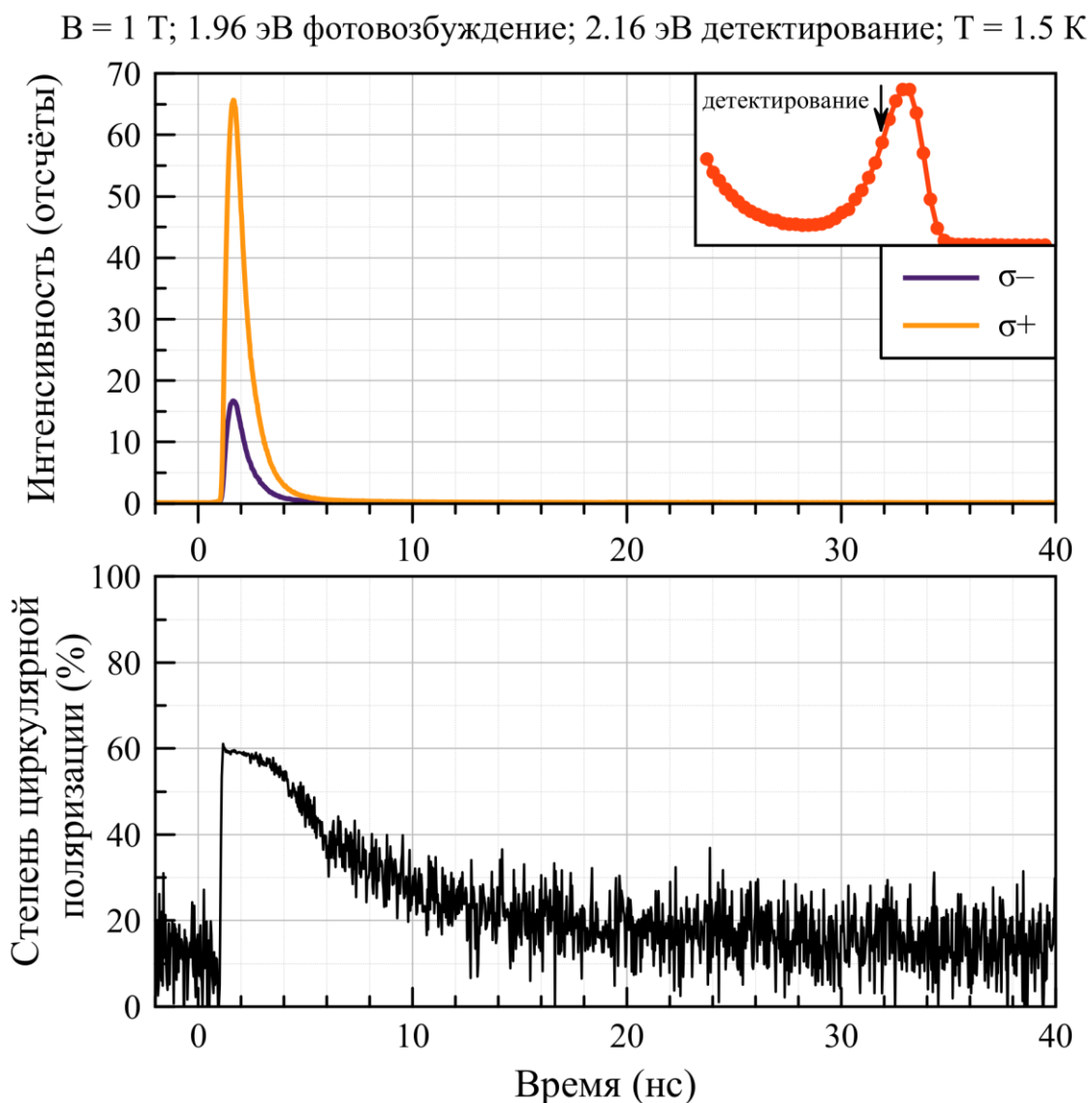


Рисунок 3.8. Кинетика магнитоиндуцированной циркулярной поляризации ФЛ $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ на энергии детектирования 2.16 эВ в магнитном поле 1 Тл в геометрии Фарадея при температуре 1.5 К

Время спиновой релаксации обоих компонент оказывается значительно короче их времен жизни: не более 100 пс – временного разрешения экспериментальной установки. Это подтверждает гипотезу о том, что обе компоненты связаны с экситонной фотолюминесценцией, так как времена спиновой релаксации зонных носителей заряда очень короткое из-за s/p-d обменного взаимодействия.

3.3. Обсуждение результатов

Одним из самых удивительных эффектов, наблюдаемых в исследуемой системе является антистоксова ЭФЛ, проявляющаяся при резонансном фотовозбуждении в полосу ВФЛ марганца (рисунок 3.1). Предположительно, она вызвана двухступенчатыми переходами d-электронов марганца с последующим переносом фотовозбуждения к зонным носителям заряда.

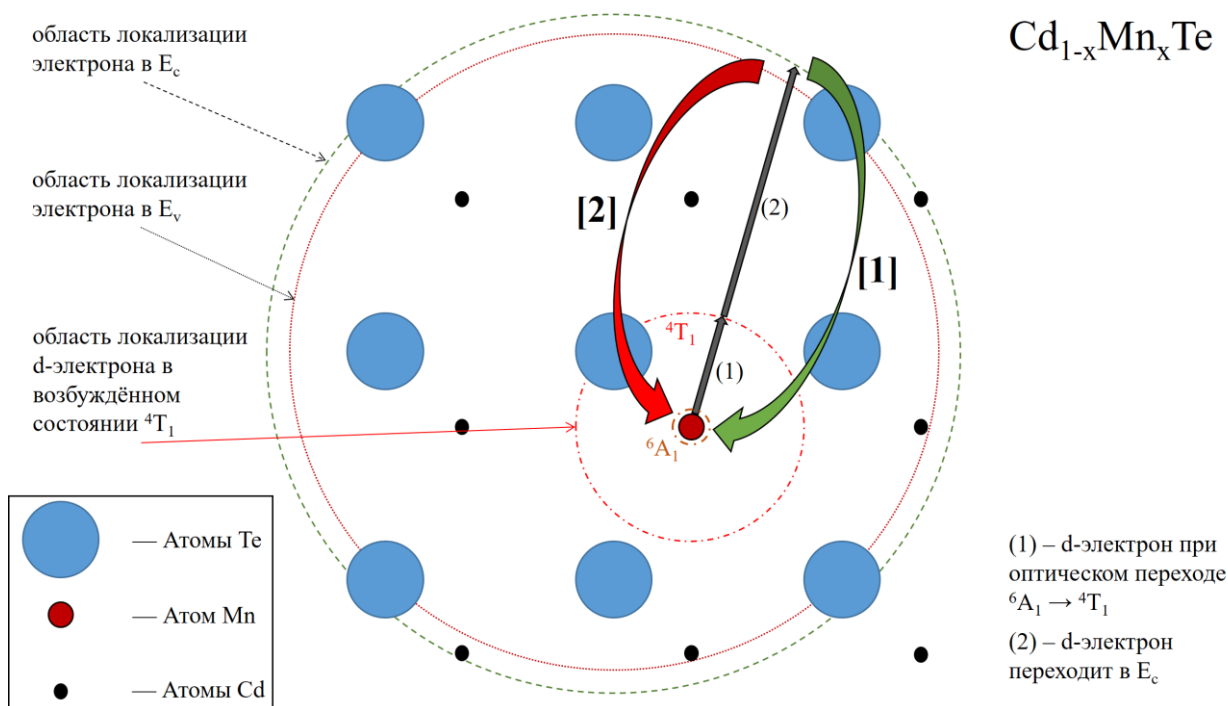


Рисунок 3.9. Схематическая иллюстрация, демонстрирующая двухступенчатый процесс поглощения света d-электроном марганца с последующим переносом фотовозбуждения в зоны.

На рисунке 3.9. представлена схема двухступенчатого поглощения света d-электронами марганца с возможностью последующего переноса фотовозбуждения в зоны и индуцированием антистоксовой ЭФЛ. На первой ступени, электрон из d-оболочки, локализованный вблизи иона марганца поглощает фотон с оптическим переходом ${}^6A_1 \rightarrow {}^4T_1$. Область локализации d-электрона в возбуждённом состоянии становится больше, но все ещё меньше по сравнению с электроном в зоне проводимости. На второй ступени, этот d-электрон поглощает второй фотон и переходит в зону проводимости, делокализуясь. После перехода d-электрона в зону проводимости, вблизи иона марганца создаётся локальное возмущение электростатического потенциала. В дальнейшем возможными являются два перехода:

- 1) «Бывший» d-электрон локализуется на марганце из зоны проводимости (обратный переход; отмечен как «II» на рисунке 3.9) – ВФЛ;
- 2) Электрон из валентной зоны занимает опустевшее состояние на ионе марганца, создавая дырку, которая связывается в экситон с «бывшим» d-электроном (отмечен как «I» на рисунке 3.9).

Такой процесс возможен благодаря большому времени жизни иона марганца в возбуждённом состоянии 4T_1 [38].

При фотовозбуждении светом с энергией фотонов 1.96 эВ компоненты степени циркулярной поляризации ЭФЛ не испытывают расщепления, как показано на рисунке 3.3. Вместо этого, имеет место сдвиг в область низких энергий. Такое же поведение демонстрирует σ^- поляризованная полоса ЭФЛ при межзонном фотовозбуждении (рисунок 3.10). Для более достоверной проверки наблюдаемой схожести была построена зависимость спектрального положения максимумов σ^- и σ^+ полос ЭФЛ при двух энергиях фотовозбуждения от величины магнитного поля (рисунок 3.11).

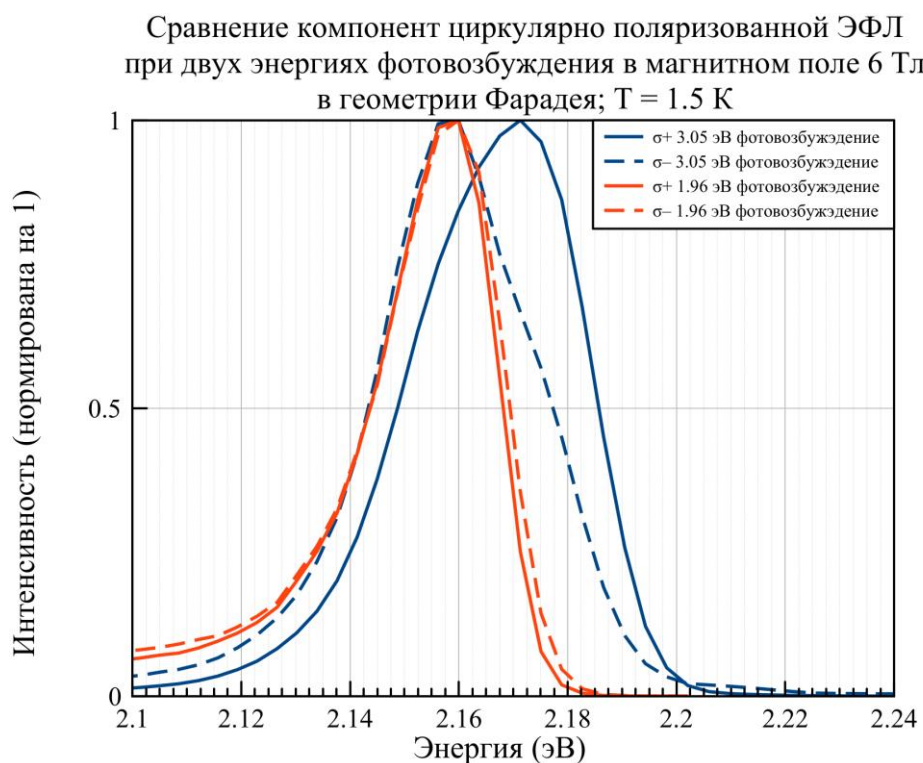


Рисунок 3.10. Сравнение компонент циркулярно поляризованной ЭФЛ при двух энергиях фотовозбуждения (3.05 эВ и 1.96 эВ) в магнитном поле 6 Тл в геометрии Фарадея при температуре 1.5 К (интенсивности компонент отнормированы на интенсивность σ^+ циркулярно поляризованной компоненты, полученной при межзонном (3.05 эВ) фотовозбуждении).

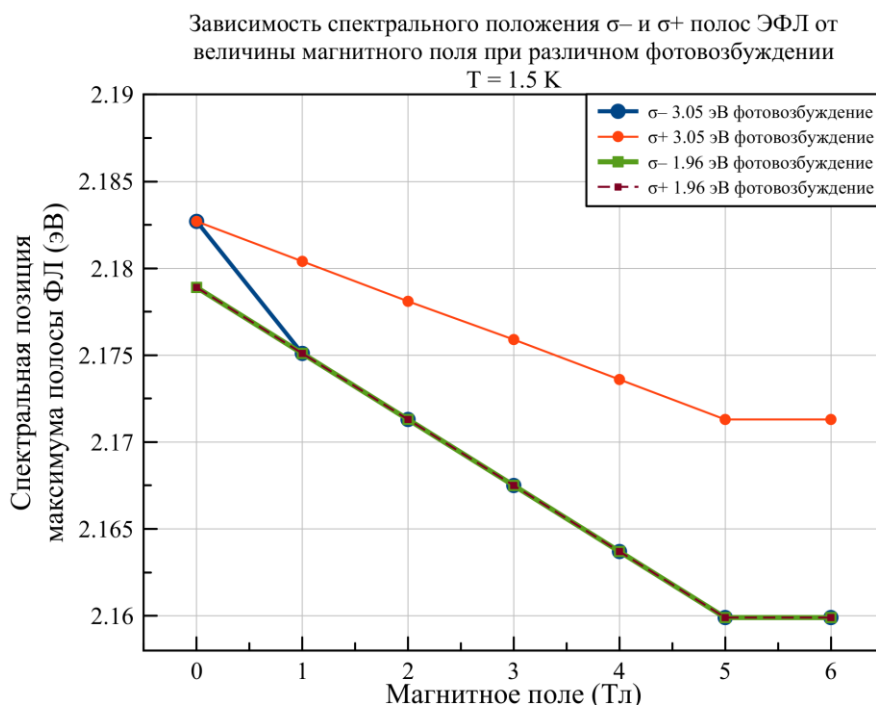


Рисунок 3.11. Зависимость спектрального положения σ^- и σ^+ полос ЭФЛ при двух энергиях фотовозбуждения от величины магнитного поля в геометрии Фарадея при температуре 1.5 К.

Действительно, можно наблюдать, что σ^- компонента циркулярно-поляризованной ЭФЛ при межзонном фотовозбуждении испытывает сдвиг аналогичный тому, который испытывают обе нерасщеплённые компоненты циркулярно-поляризованной ЭФЛ при резонансном фотовозбуждении в полосу ВФЛ марганца, что указывает на их идентичное происхождение.

Также, при фотовозбуждении с энергией фотонов 1.96 эВ степень циркулярной поляризации ЭФЛ в магнитном поле 6 Тл достигает всего 35%. Объясняет наблюдаемое, предположительно, глубина проникновения света в образец (рисунок 3.12).

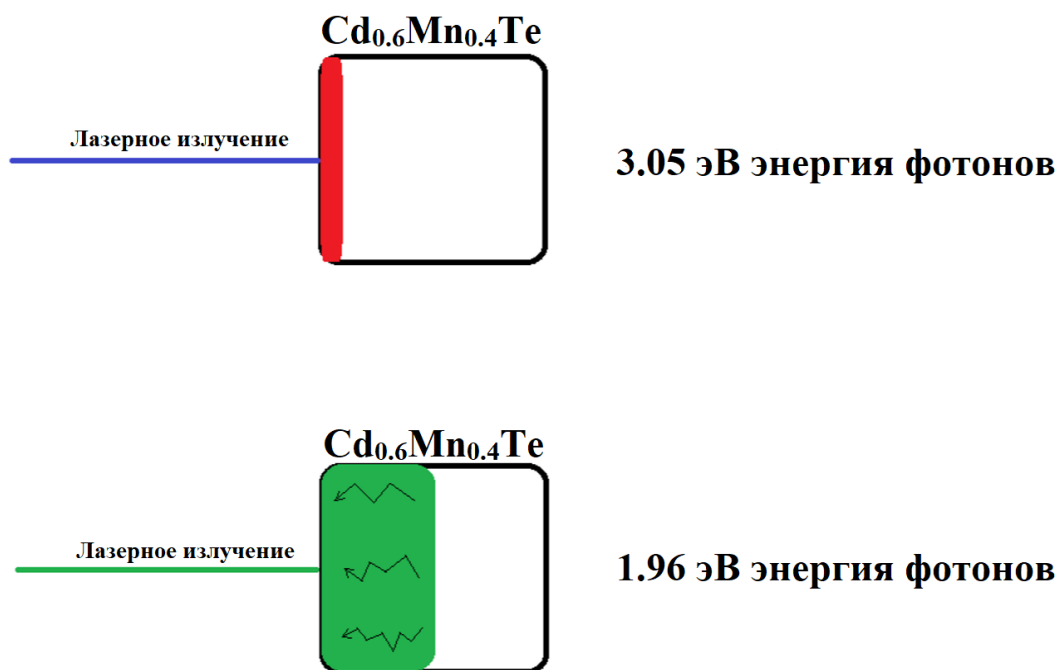


Рисунок 3.12. Иллюстрация зависимости глубины проникновения света от энергии фотонов.

В соответствии с законом Бугера-Ламберта-Бера:

$$I(x) = I_0 e^{-\alpha x}, \quad (3.1)$$

где $I(x)$ – интенсивность света, прошедшего путь x в среде;
 I_0 – интенсивность света, вошедшего в среду (за вычетом отражения на поверхности);

α – коэффициент поглощения;

Коэффициент поглощения зависит от энергии света, и при межзонном возбуждении имеет порядок 10^5 см^{-1} , а при возбуждении в полосу внутрицентральной фотолюминесценции марганца, которая, вообще говоря, лежит в полосе прозрачности, имеет порядок 10^2 см^{-1} . Таким образом, при межзонном фотовозбуждении, свет почти полностью поглощается на толщине порядка нескольких сотен нанометров ($1/\alpha$), и мы наблюдаем люминесценцию с тонкого приповерхностного слоя образца. В случае резонансного фотовозбуждения в полосу ВФЛ свет проникает значительно глубже – на сотни микрон – в образец, рождая там электрон-дырочные пары, фотолюминесценция которых, распространяясь через толщу образца, испытывает перепоглощение на энергиях выше 2.2 эВ.

Для проверки этого предположения, измерены спектры ФЛ при межзонном фотовозбуждении образца с обратной стороны (рисунок 3.13). Для этого, свет фокусировался в той же точке на передней стороне образца, как и в предыдущих измерениях, а ФЛ детектировалась с обратной стороны, через специальное окно в криостате.

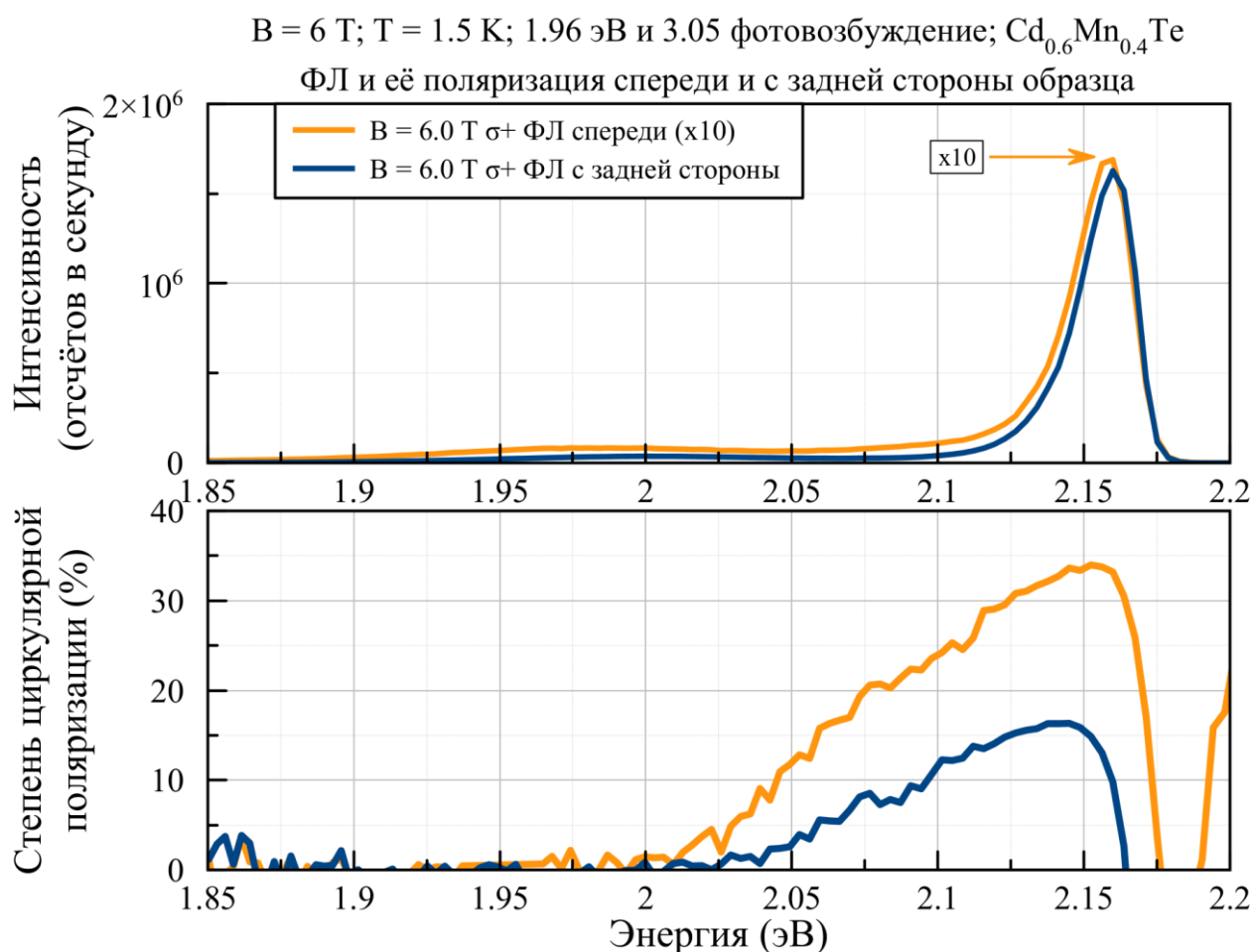


Рисунок 3.13. Сравнение спектров ФЛ и её поляризации при детектировании ФЛ спереди (резонансное фотозвуждение в полосу ВФЛ марганца) и детектировании с обратной стороны образца (межзонное фотозвуждение) в магнитном поле 6 Тл в геометрии Фарадея при температуре 1.5 К (интенсивность ФЛ при фотозвуждении с энергией фотонов 1.96 эВ умножена в 10 раз).

На коротковолновом краю σ^+ компонента циркулярно-поляризованной ЭФЛ, полученная при межзонном фотозвуждении при детектировании ФЛ с обратной стороны образца совпадает с σ^+ компонентой циркулярно-поляризованной ЭФЛ, полученной при фотозвуждении резонансно в полосу ВФЛ марганца при детектировании спереди.

На основе всего вышесказанного, выдвигается гипотеза о том, что при возбуждении светом с энергией фотонов 3.05 эВ в спектральной области излучения электрон-дырочных пар видно два типа экситона: высокоэнергетичный и низкоэнергетичный (рисунок 3.14). При возбуждении же

с энергией фотонов 1.96 эВ (рисунок 3.3), мы наблюдаем только низкоэнергетичный. Поляризация высокоэнергетичного экситона достигает 100% в 6 Тл, в то время как поляризация низкоэнергетичного достигает 35% в поле 6 Тл. При межзонном фотовозбуждении на длинноволновом краю люминесценции степень циркулярной поляризации достигает только 80%, что является результатом смешения двух полос фотолюминесценции: 100% поляризованного высокоэнергетичного экситона, чей вклад в ФЛ доминирует и 35% поляризованной от экситона с значительно меньшей областью локализации, в которую попадает меньшее количество свободных спинов марганца.

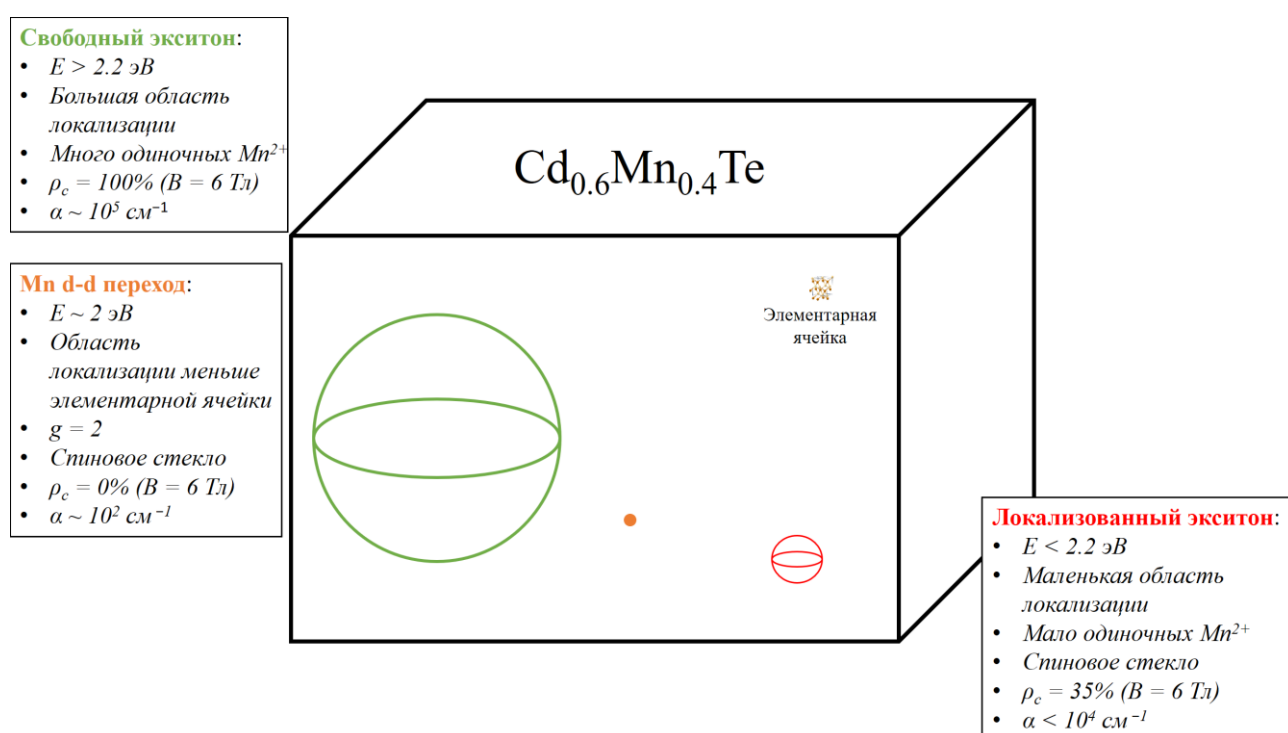


Рисунок 3.14. Иллюстрация демонстрирующая, различаемые сорта экситонов в системе $Cd_{0.6}Mn_{0.4}Te$ и их физические свойства

Предположительно, высокоэнергетичная полоса экситонной ФЛ происходит от рекомбинации свободных экситонов. На это указывает факт перепоглощения фотолюминесценции на энергиях, соответствующих этим экситонам, при фотовозбуждении в полосу d-d переходов, и при межзонном фотовозбуждении с обратной стороны образца. Такие экситоны могут иметь

большую область локализации и захватывать большое число одиночных ионов марганца, дающих вклад в гигантское зеемановское расщепление. Низкоэнергетичная полоса экситонной ФЛ может происходить от рекомбинации экситонов, локализованных на флуктуациях состава или на нейтральных акцепторах [39; 40]. Из-за меньшей области локализации, такие экситоны чувствуют меньше свободных ионов марганца, и их степень магнитоиндуцированной циркулярной поляризации меньше.

Дополнительное подтверждение гипотезы о том, что в исследуемой структуре наблюдается два типа экситонов даёт анализ кинетики степени циркулярной поляризации экситонной ФЛ на разных временных промежутках (рисунок 3.8). На временах от 0 до 3 нс, где основной вклад в фотолуминесценцию вносит короткоживущая компонента, степень циркулярной поляризации составляет 60% в 1 Тл (рисунок 3.15), что соответствует излучению свободного экситона. На временах выше 10 нс, где видна только долгоживущая компонента, степень циркулярной поляризации достигает 20%, что соответствует излучению локализованного экситона.

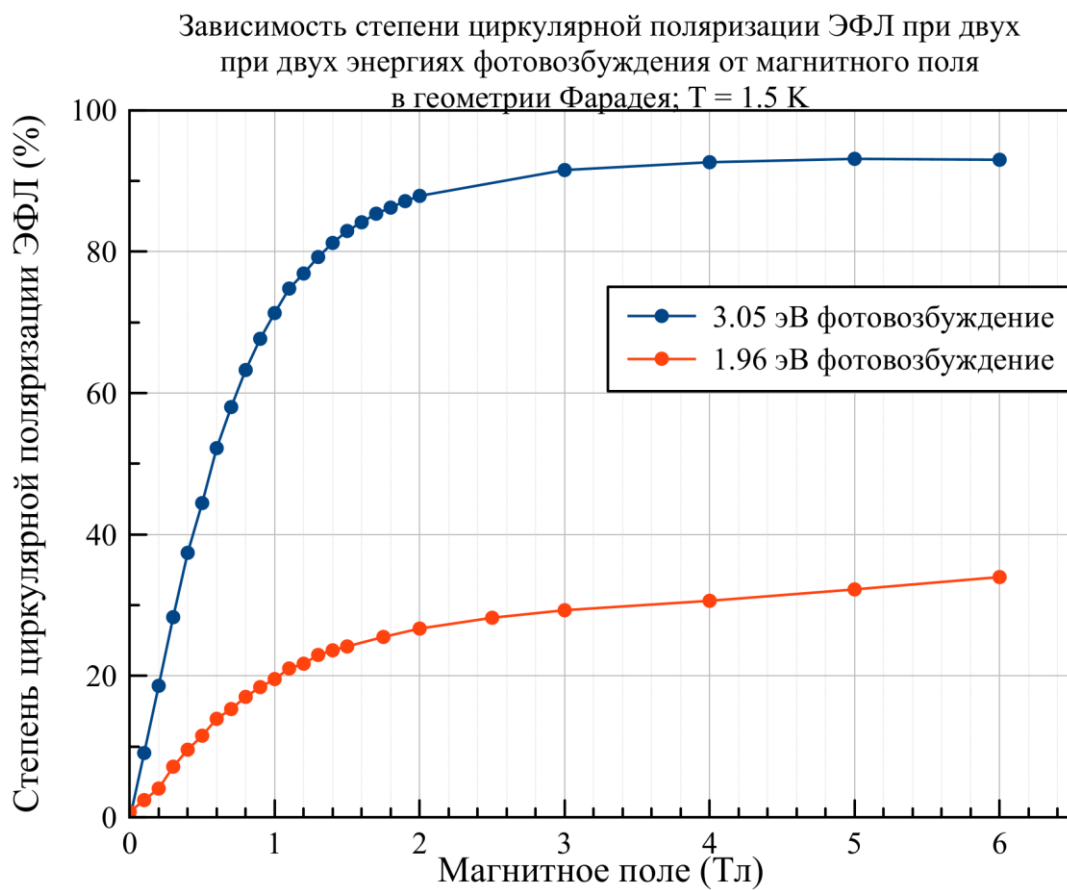


Рисунок 3.15. Зависимость степени циркулярной поляризации ЭФЛ при двух энергиях фотовозбуждения от магнитного поля в геометрии Фарадея при температуре 1.5 К.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В дипломной работе исследованы спектральные, поляризационные и кинетические особенности фотолюминесценции $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ в состоянии спинового стекла при температуре жидкого гелия в магнитном поле в геометрии Фарадея при разных условиях фотовозбуждения.

Была обнаружена антистоксова экситонная фотолюминесценция при резонансном фотовозбуждении внутрицентровых d-d переходов в ионах марганца, которая объясняется двухступенчатыми переходами d-электронов марганца с последующим переносом оптического возбуждения к зонным носителям заряда.

Анализ кинетик затухания экситонной фотолюминесценции, а также кинетик магнитоиндуцированной циркулярной поляризации экситонной фотолюминесценции позволил сформулировать гипотезу о наличии двух сортов экситонов в исследуемой системе, отличающихся областью локализации, энергией и имеющих разные степени циркулярной поляризации в магнитном поле. Предположительно, степень циркулярной поляризации фотолюминесценции в этом случае определяется количеством одиночных (не связанных в бесконечный кластер) ионов марганца, которые способны вносить некоторый вклад в парамагнитную восприимчивость системы (поляризоваться по спине во внешнем магнитном поле).

СПИСОК ИСПОЛЬЗУЕМЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Peterson D. L. et al. Spin-flip Raman scattering in a diluted magnetic semiconductor: $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ //Solid State Communications. – 1982. – Т. 43. – №. 9. – С. 667-669.
2. Frey J. et al. Observation of nonlinear Faraday processes in CdMnTe diluted magnetic semiconductors //Optics communications. – 1991. – Т. 84. – №. 1-2. – С. 76-80.
3. Shand P. M. et al. Spin-glass ordering in the diluted magnetic semiconductor $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ //Physical Review B. – 1998. – Т. 58. – №. 19. – С. 12876.
4. Marinari E., Martín-Mayor V., Pagnani A. Spin-glass ordering in diluted magnetic semiconductors: A Monte Carlo study //Physical Review B. – 2000. – Т. 62. – №. 8. – С. 4999.
5. Fischer K. H., Hertz J. A. Spin glasses. – Cambridge university press, 1993. – №. 1.
6. Baryshnikov K. A. et al. Resonant optical alignment and orientation of Mn^{2+} spins in CdMnTe crystals //Physical Review B. – 2015. – Т. 92. – №. 20. – С. 205202.
7. Jaroszyński J., Dietl T. Mesoscopic phenomena in diluted magnetic semiconductors //Materials Science and Engineering: B. – 2001. – Т. 84. – №. 1-2. – С. 81-87.
8. Dietl T. A ten-year perspective on dilute magnetic semiconductors and oxides //Nature materials. – 2010. – Т. 9. – №. 12. – С. 965-974.
9. König J., MacDonald A. H. EPR and ferromagnetism in diluted magnetic semiconductor quantum wells //Physical review letters. – 2003. – Т. 91. – №. 7. – С. 077202.
10. Ganichev S. D. et al. Spin currents in diluted magnetic semiconductors //Physical review letters. – 2009. – Т. 102. – №. 15. – С. 156602.

11. Kneip M. K. et al. Engineering of spin-lattice relaxation dynamics by digital growth of diluted magnetic semiconductor CdMnTe //Applied physics letters. – 2006. – Т. 88. – №. 15.
12. Rodrigues E. S., de Oliveira P. M. C. Spin-glass energy landscape //Journal of statistical physics. – 1994. – Т. 74. – №. 5. – С. 1265-1272.
13. Огнев А. В., Самардак А. С. Спинтроника: физические принципы, устройства, перспективы //Вестник Дальневосточного отделения Российской академии наук. – 2006. – №. 4. – С. 70-80.
14. Furdyna J. K. Diluted magnetic semiconductors //Journal of Applied Physics. – 1988. – Т. 64. – №. 4. – С. R29-R64.
15. Galazka R. R., Nagata S., Keesom P. H. Paramagnetic—spin-glass—antiferromagnetic phase transitions in Cd $1-x$ Mn x Te from specific heat and magnetic susceptibility measurements //Physical Review B. – 1980. – Т. 22. – №. 7. – С. 3344.
16. McAlister S. P., Furdyna J. K., Girit W. Magnetic susceptibility and spin-glass transition in Zn $1-x$ Mn x Te //Physical Review B. – 1984. – Т. 29. – №. 3. – С. 1310.
17. Oseroff S. B. Magnetic susceptibility and EPR measurements in concentrated spin-glasses: Cd $1-x$ Mn x Te and Cd $1-x$ Mn x Se //Physical Review B. – 1982. – Т. 25. – №. 11. – С. 6584.
18. Novak M. A., Oseroff S., Symko O. G. Transition from spin-glass to single impurity behavior in Cd $_{1-x}$ Mn $_x$ Te //Physica B+ C. – 1981. – Т. 107. – №. 1-3. – С. 313-314.
19. Захарченя Б., Кусраев Ю. Оптическое проявление спин-стекольных свойств полумагнитных полупроводников //Письма в ЖЭТФ. – 1980. – Т. 50. – №. 4. – С. 199-201.
20. Ferrand D. et al. Applications of II–VI diluted magnetic semiconductors for magneto-electronics //Solid state communications. – 2001. – Т. 119. – №. 4-5. – С. 237-244.

21. Pajczkowska A. Physicochemical properties and crystal growth of AIIBVI-MnBVI systems //Progress in Crystal Growth and Characterization. – 1978. – Т. 1. – №. 3. – С. 289-326.
22. Gumlich H. E. Electro-and photoluminescence properties of Mn^{2+} in ZnS and ZnCdS //Journal of Luminescence. – 1981. – Т. 23. – №. 1-2. – С. 73-99.
23. Hass K. C., Ehrenreich H. Electronic and magnetic properties of II–VI diluted magnetic semiconductors //Journal of Crystal Growth. – 1988. – Т. 86. – №. 1-4. – С. 8-14.
24. Lee Y. R., Ramdas A. K. A piezomodulation study of the absorption edge and Mn^{++} internal transition in $Cd_{1-x}Mn_xTe$, a prototype of diluted magnetic semiconductors //Solid state communications. – 1984. – Т. 51. – №. 11. – С. 861-863.
25. Комаров А. В. [и др.]. Магнитооптические исследования и двойной оптико-магнитный резонанс экситонной полосы в $CdTe: Mn$ //ЖЭТФ. – 1979. – Т. 73. – С. 608.
26. Агекян В. Ф. Внутрицентровые переходы ионов группы железа в полупроводниковых матрицах типа II-VI (Обзор) //Физика твердого тела. – 2002. – Т. 44. – №. 11. – С. 1921-1939.
27. Baryshnikov K. A. Intracenter optical transitions in Mn^{2+} ion in $CdMnTe$ crystals: the effect of strong Jahn–Teller coupling in excited state //Journal of Physics: Condensed Matter. – 2020. – Т. 32. – №. 36. – С. 365503.
28. Lee S., Dobrowolska M., Furdyna J. K. Effect of spin-dependent Mn^{2+} internal transitions in $CdSe/Zn_{1-x}Mn_xSe$ magnetic semiconductor quantum dot systems //Physical Review B—Condensed Matter and Materials Physics. – 2005. – Т. 72. – №. 7. – С. 075320.
29. Besombes L. et al. Probing the spin state of a single magnetic ion in an individual quantum dot //Physical review letters. – 2004. – Т. 93. – №. 20. – С. 207403.
30. Goldfarb R. B., Patton C. E. Superparamagnetism and spin-glass freezing in nickel-manganese alloys //Physical Review B. – 1981. – Т. 24. – №. 3. – С. 1360.

31. Mauger A. et al. Dynamics of the spin-glass freezing in $\text{Cd}_{0.6}\text{Mn}_{0.4}\text{Te}$ //Physical Review B. – 1988. – T. 37. – №. 15. – C. 9022.
32. Jacobs A. E. Metastable states, domain walls, domain-flip transitions, and inhomogeneous ordering in the short-range Ising spin glass //Physical Review B. – 1985. – T. 32. – №. 11. – C. 7607.
33. Morgownik A. F. J., Mydosh J. A. High-temperature susceptibility of the Cu Mn spin-glass //Physical Review B. – 1981. – T. 24. – №. 9. – C. 5277.
34. Gnatenko Y. P., Bukivskij P. M. Optical observation of spin-glass formation in $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ compound //Materials Research Express. – 2015. – T. 2. – №. 9. – C. 095903.
35. Pickup R. M. et al. Generalized spin-glass relaxation //Physical review letters. – 2009. – T. 102. – №. 9. – C. 097202.
36. Golnik A., Ginter J., Gaj J. A. Magnetic polarons in exciton luminescence of $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ //Journal of Physics C: Solid State Physics. – 1983. – T. 16. – №. 31. – C. 6073-6084.
37. Kozyrev N. V. et al. Optical orientation recovery of Mn^{2+} spins in the first excited state in bulk $(\text{Zn}, \text{Mn}) \text{Se}$ //Physical Review B. – 2025. – T. 111. – №. 13. – C. 134432.
38. Агекян В. Ф. и др. Кинетика 3d-люминесценции ионов Mn^{2+} в $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ //Физика твердого тела. – 2003. – Т. 45. – №. 8. – С. 1369-1372.
39. Okada T., Itoh T. Polaron-induced anti-Stokes photoluminescence under selective excitation in diluted magnetic semiconductors //Physical Review B—Condensed Matter and Materials Physics. – 2011. – T. 83. – №. 15. – C. 155211.
40. Okada T., Itoh T. Coexistence of bound and localized exciton magnetic polarons in $\text{Cd}_{0.8}\text{Mn}_{0.2}\text{Te}$ //Journal of Physics: Condensed Matter. – 2007. – T. 19. – №. 18. – C. 186210.