

# Прямые измерения пикосекундной кинетики нагрева спиновой подсистемы в полумагнитных полупроводниковых наноструктурах

А. А. Максимов<sup>+1)</sup>, Е. В. Филатов<sup>+</sup>, И. И. Тартаковский<sup>+\*</sup>, Д. Р. Яковлев<sup>×°</sup>, А. Ваг<sup>∇2)</sup>

<sup>+</sup> Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черногловка, Россия

<sup>\*</sup> НИУ Высшая школа экономики, 101000 Москва, Россия

<sup>×</sup> Experimentelle Physik II, University of Dortmund, D-44227 Dortmund, Germany

<sup>°</sup> Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе, 194021 С.-Петербург, Россия

<sup>∇</sup> Institute of Semiconductor Technology, Braunschweig Technical University, D-38106 Braunschweig, Germany

Поступила в редакцию 21 октября 2019 г.

После переработки 13 ноября 2019 г.

Принята к публикации 14 ноября 2019 г.

Изучена кинетика изменения намагниченности полумагнитных полупроводниковых сверхрешеток второго типа  $\text{Zn}_{0.99}\text{Mn}_{0.01}\text{Se}/\text{Be}_{0.93}\text{Mn}_{0.07}\text{Te}$  во внешних магнитных полях с использованием оптической методики с высоким временным разрешением. Впервые выполнены прямые измерения пикосекундных времен передачи энергии и спина фотозовужденных носителей в магнитную подсистему ионов марганца.

DOI: 10.1134/S0370274X1924007X

В последние годы большое внимание привлекает быстро развивающаяся область науки и техники – спинтроника. Были предложены новые принципы работы приборов, в которых электронный спин наряду с зарядом используется для передачи и обработки информации [1–3]. Основными задачами полупроводниковой спинтроники являются исследования инжекции, ориентации, накопления и детектирования спинов носителей и изучение возможностей управления ими оптическими и электрическими методами. Полумагнитные полупроводники и наноструктуры на основе II–VI материалов с ионами марганца рассматриваются как модельные объекты для возможных применений в спинтронике. В таких структурах магнитные ионы  $\text{Mn}^{2+}$  изоэлектронно замещают ионы металлов в катионных подрешетках, что позволяет выращивать трехкомпонентные сплавы с концентрацией Mn вплоть до 100%. Такие материалы, как  $(\text{Zn},\text{Mn})\text{Se}$  или  $(\text{Cd},\text{Mn})\text{Te}$  обладают высоким структурным совершенством и демонстрируют сильную экситонную фотолюминесценцию, что позволяет применять различные экспериментальные оптические методы, в том числе при приложении магнитного поля, для их исследований.

Хорошо известно, что намагниченность в полумагнитном полупроводнике  $M(B, T_{\text{Mn}})$  как функция величины магнитного поля и температуры спиновой подсистемы ионов Mn выражается формулой [4]:

$$M(B, T_{\text{Mn}}) = g\mu_B x N_0 S_{\text{eff}}(x) B_{5/2} \left[ \frac{5g\mu_B B}{2k_B(T_{\text{Mn}} + T_0(x))} \right].$$

Здесь  $N_0$  – обратный объем элементарной ячейки кристалла,  $B_{5/2}$  – модифицированная функция Бриллюэна,  $g$  – фактор иона  $\text{Mn}^{2+}$   $g = 2$ , константа Больцмана  $k_B$  и магнетон Бора  $\mu_B$ .  $S_{\text{eff}}(x)$  и  $T_0(x)$  – эффективный спин и эффективная температура соответственно. Эти два феноменологических параметра, зависящие от концентрации магнитных ионов  $x$ , учитывают антиферромагнитное взаимодействие между ближайшими соседними ионами марганца и их вклад в намагниченность [5, 6]. Гигантский эффект Зеемана в полумагнитных полупроводниках приводит к сдвигу  $\Delta E_{e(h)}(B, T_{\text{Mn}})$  зоны проводимости (валентной зоны) на величину:

$$\Delta E_{e(h)}(B, T_{\text{Mn}}) = \frac{\alpha_e(h)}{\mu_B g} M(B, T_{\text{Mn}}),$$

где  $N_0\alpha_e$  и  $N_0\alpha_h$  – константы обменного взаимодействия в зоне проводимости и валентной зоне. В  $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  они равны 0.26 и  $-1.31$  эВ, а в  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  0.22 и  $-0.88$  эВ, соответственно [7].

<sup>1)</sup> e-mail: maksimov@issp.ac.ru

<sup>2)</sup> A. Waag.

Таким образом, исследования низкотемпературных спектров магнитооптической фотолюминесценции позволяют получать количественную информацию о температуре и намагниченности подсистемы ионов Mn. Действительно, сдвиг линии экситонной люминесценции во внешних магнитных полях прямо пропорционален намагниченности, что позволяет экспериментально реализовать внутренний термометр спиновой температуры магнитных ионов, поскольку ее повышение приводит к уменьшению Зеемановского сдвига полосы излучения. Измерения низкотемпературных спектров экситонной люминесценции с временным разрешением во внешних магнитных полях позволяет также исследовать динамику изменения намагниченности и температуры спиновой подсистемы полумагнитных полупроводниковых структур при создании в них неравновесной намагниченности, например, с помощью мощной импульсной оптической накачки [8].

При оптических исследованиях полумагнитных II-VI полупроводников с магнитными ионами марганца всегда возникает вопрос о способах передачи энергии от фотовозбужденных носителей к магнитной подсистеме. Существуют два пути для такой передачи энергии (см. схему на рис. 1a). *Прямой* – через обменное взаимодействие горячих носителей с локализованными спинами ионов Mn, характеризующее короткими временами элементарных актов этого взаимодействия  $\tau_{e-Mn}$ , лежащими в пикосекундной и субпикосекундной области [9, 10]. *Непрямой путь* – через испускание неравновесных фононов при релаксации носителей, с также короткими временами  $\tau_{e-L}$ , и последующим процессом спин-решеточной релаксации с обычно более длинными временами  $\tau_{SLR}$ . Экспериментальное определение разной эффективности этих процессов, зависящей от отношения времен  $\tau_{e-Mn}$  и  $\tau_{e-L}$ , оказывается не всегда простым. Так, тщательный анализ, проведенный в работе [11], показал, что несмотря на наблюдение в более ранних работах при возбуждении длинными оптическими импульсами (см., например, [12, 13]) времен нагрева марганцевой подсистемы, совпадающих с временами спин-решеточной релаксации  $\tau_{SLR}$ , это не могло однозначно свидетельствовать в пользу доминирования непрямого пути. Переход к оптическому возбуждению полумагнитных полупроводниковых квантовых ям мощными импульсами лазеров наносекундной длительности позволил в работе [11] показать, что в квантовых ямах на основе (Zn,Mn)Se всегда доминируют процессы прямой передачи энергии от фотовозбужденных носителей в магнитную систему. В случае же квантовых ям на основе (Cd,Mn)Te при из-

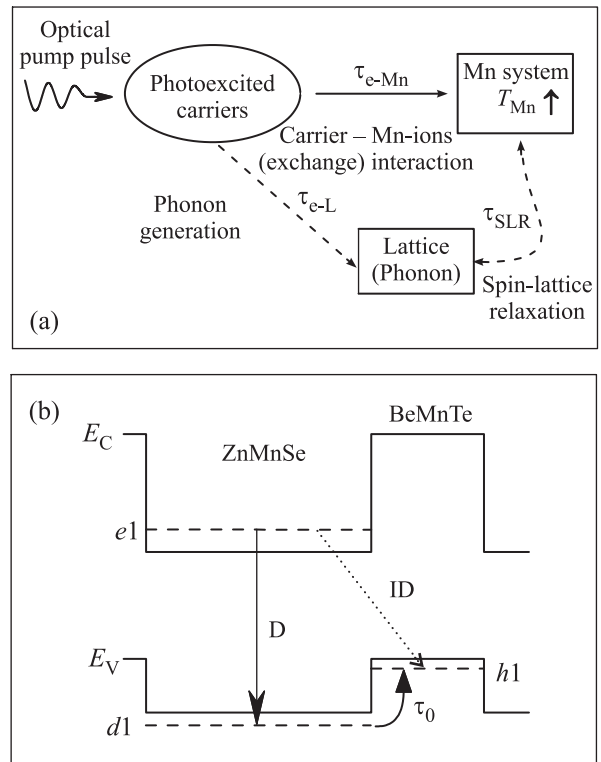


Рис. 1. (a) – Различные пути передачи энергии от фотовозбужденных носителей в спиновую подсистему ионов Mn. Сплошной стрелкой показан *прямой* путь через обменное взаимодействие ( $\tau_{e-Mn}$ ), пунктирные стрелки показывают *непрямой* путь через возбуждение неравновесных фононов ( $\tau_{e-L}$ ) и процесс спин-решеточной релаксации ( $\tau_{SLR}$ ). (b) – Схема зон сверхрешеток второго типа (Zn,Mn)Se/(Be,Mn)Te при низких уровнях оптического возбуждения, нижайшие по энергии уровни электронов ( $e1$ ), дырок ( $h1$ ) и надбарьерный уровень дырок в слое (Zn,Mn)Se ( $d1$ ). Время жизни дырок в надбарьерном состоянии  $\tau_0$ , стрелками показаны пространственно прямые (D) и не прямые (ID) оптические переходы

мерениях кинетики изменений намагниченности во внешних магнитных полях с помощью развитой в работе [8] полностью оптической методики процесс прямого нагрева ионов Mn по-прежнему может быть выделен, хотя и является менее эффективным, чем непрямого нагрева через фононную подсистему.

Первой экспериментальной попыткой определить характерное время прямого нагрева фотовозбужденными носителями марганцевой подсистемы в полумагнитных квантовых ямах (Zn,Mn)Se первого типа с немагнитными барьерами была работа [14]. В ней оптическое возбуждение полумагнитного образца велось с помощью фемтосекундных лазерных импульсов, временное разрешение составляло  $\sim 20$  пс и была

получена оценка для времени нагрева  $\sim 100$  пс, однако, как выяснилось в последующих работах, это время определялось не временем передачи энергии носителей в магнитную подсистему, а временем их сбора в квантовую яму первого типа. Тем не менее, важным результатом работы [14] была предложенная модель многократного рассеяния тяжелых дырок с передачей энергии и спина локализованным спинам ионов марганца, что должно было определять доминирующую роль именно фотовозбужденных дырок в процессе нагрева магнитной системы.

Для определения истинного времени взаимодействия носителей с магнитными ионами важным стал переход к исследованию полумагнитных полупроводниковых сверхрешеток второго типа на основе  $(\text{Zn},\text{Mn})\text{Se}/(\text{Be},\text{Mn})\text{Te}$ , поскольку в них имеется возможность экспериментально изменять время взаимодействия фотовозбужденных носителей с магнитными ионами. Схематически зонная структура таких сверхрешеток показана на рис. 1б. Первоначально фотовозбужденные носители в них рождаются в слое  $(\text{Zn},\text{Mn})\text{Se}$ , электроны затем релаксируют в нижайшее состояние на уровень  $e1$ , а дырки на уровень  $h1$  в слое  $(\text{Be},\text{Mn})\text{Te}$ . Часть фотовозбужденных дырок задерживается в нижайшем надбарьерном состоянии  $d1$  в слое  $(\text{Zn},\text{Mn})\text{Se}$  на время их жизни  $\tau_0$ , что приводит к появлению в спектрах низкотемпературной фотолюминесценции, помимо пространственно непрямых оптических переходов  $ID$  с энергией  $\sim 2$  эВ, пространственно прямых переходов  $D$  с энергией  $\sim 2.8$  эВ.

При высоких уровнях оптического возбуждения внутри сверхрешеток  $\text{ZnSe}/\text{BeTe}$  из-за большой концентрации пространственно разделенных зарядов электронов и дырок возникают сильные электрические поля, которые приводят, в свою очередь, к сильному изгибу зон [15]. Время жизни в надбарьерных состояниях фотовозбужденных в слое  $\text{ZnSe}$  дырок  $\tau_0$  сильно зависит от ширины этого слоя, меняясь при низких уровнях возбуждения от  $\sim 1$  пс в слое шириной 10 нм до величины  $\sim 18$  пс в 20 нм слое [16]. При увеличении оптической накачки этих образцов, обеспечивающей концентрации фотовозбужденных пространственно разделенных носителей  $\sim 10^{13} \text{ см}^{-2}$ , сильный изгиб зон приводит к формированию метастабильных надбарьерных дырочных состояний [17], что увеличивает времена жизни дырок в слое  $\text{ZnSe}$  до величин  $\sim 40$  и  $\gtrsim 100$  пс соответственно [18].

В работе [19] исследовалась эффективность нагрева магнитной подсистемы в барьерных слоях сверхрешеток  $\text{Zn}_{0.99}\text{Mn}_{0.01}\text{Se}/\text{Be}_{0.93}\text{Mn}_{0.07}\text{Te}$  с шири-

нами слоев  $(\text{Zn},\text{Mn})\text{Se}$  10 и 20 нм при различных уровнях возбуждения импульсами лазера наносекундной длительности. При низких уровнях оптической накачки нагрев был намного меньше в образце с более узким слоем  $(\text{Zn},\text{Mn})\text{Se}$  из-за того, что время жизни горячих дырок в нем также намного меньше, чем в образце с шириной барьера 20 нм. Однако при повышении уровня накачки, начиная с некоторой величины, температуры марганцевой системы в разных образцах в момент времени после действия возбуждающего лазера сравнивались. Величина оцененной концентрации разделенных носителей, при которой выравнивались температуры  $\text{Mn}$  в различных образцах отвечала, согласно результатам работы [18], времени жизни дырок в слое  $(\text{Zn},\text{Mn})\text{Se}$  шириной 10 нм  $\sim 20$  пс. Это величина дала оценку для характерного времени передачи спина и энергии фотовозбужденных дырок в спиновую систему  $\text{Mn}$ . Кроме того, результаты работы [19] подтвердили модель из работы [14] о доминирующей роли дырок в нагреве спиновой системы полумагнитных полупроводников.

В настоящей работе были выполнены измерения с высоким временным разрешением  $\sim 2$  пс кинетики спектрального поведения линии фотолюминесценции пространственно прямого оптического перехода в сверхрешетках второго типа  $\text{Zn}_{0.99}\text{Mn}_{0.01}\text{Se}/\text{Be}_{0.93}\text{Mn}_{0.07}\text{Te}$  в различных магнитных полях до 3 Т. Сверхрешетка была выращена методом молекулярно-пучковой эпитаксии на (100)-ориентированной  $\text{GaAs}$  подложке и состояла из 10 чередующихся слоев  $\text{Zn}_{0.99}\text{Mn}_{0.01}\text{Se}$  и  $\text{Be}_{0.93}\text{Mn}_{0.07}\text{Te}$  с ширинами 10 и 5 нм соответственно. Образец помещался в сверхтекучий жидкий гелий при температуре  $T \approx 1.8 \text{ К}$  в оптическом криостате со сверхпроводящим соленоидом, создающим магнитное поле, параллельное оси роста сверхрешетки (геометрия Фарадея).

Фотолюминесценция возбуждалась импульсами второй гармоники  $\text{Ti}:\text{Sa}$  фемтосекундного (длительность импульса  $\sim 80$  фс,  $\lambda \approx 400$  нм) лазера, работающего на частоте 80 МГц. С помощью ячейки Покеляса частота следования импульсов возбуждения, попадающих на образец, уменьшалась до величин  $\sim 2\text{--}5$  кГц, что обеспечивало полную релаксацию неравновесной намагниченности в спиновой подсистеме ионов  $\text{Mn}$ , вызванной мощным лазерным импульсом, за времена, меньшие, чем время между двумя последовательными импульсами. Это было возможно, поскольку время релаксации намагниченности в слое  $\text{Zn}_{0.99}\text{Mn}_{0.01}\text{Se}$  определялось не характерным временем спин-решеточной релаксации в  $II\text{-}VI$  полумагнитных полупроводниках с концентрацией

$Mn\ x \sim 1\% \tau_{SLR} \gtrsim 200$  мкс [11], а временем  $\sim 1.7$  мкс спиновой диффузии возбуждений из этого слоя в слой  $Be_{0.93}Mn_{0.07}Te$  с более высокой концентрацией  $x$  магнитных ионов и, соответственно, с быстрым временем спин-решеточной релаксации  $\tau_{SLR}$  [20].

Разрешенные по времени спектры фотолюминесценции пространственно прямого оптического перехода регистрировались с помощью спектрометра, сопряженного со стрик-камерой, обеспечивающей временное разрешение  $\approx 2$  пс. Лазерное излучение фокусировалось в пятно размером 15–100 мкм на поверхности образца. Максимальная плотность энергии в импульсе достигала величины  $\gtrsim 0.25$  мДж/см<sup>2</sup>, величина оптической накачки регулировалась с помощью нейтральных фильтров и размеров возбуждающего пятна.

На рисунке 2а представлены проинтегрированные по времени спектры фотолюминесценции сверхрешетки  $Zn_{0.99}Mn_{0.01}Se/Be_{0.93}Mn_{0.07}Te$  в спектральной области пространственно прямого оптического перехода между уровнями  $e1$  и  $d1$ , полученные при низком уровне возбуждения. Видно, что в магнитном поле 3 Т наблюдается гигантский Зеемановский сдвиг  $\sim 16.4$  мэВ полосы излучения. Время жизни фотовозбужденных дырок  $\tau_0$  в надбарьерном состоянии  $d1$  может быть определено из зависимости интенсивности полосы фотолюминесценции от времени. Как уже отмечалось, характерная величина  $\tau_0$  при низких уровнях оптического возбуждения в режиме плоских зон для сверхрешеток  $ZnSe/BeTe$  с ширинами слоев 10/5 нм составляет  $\sim 1$  пс. Однако при повышении уровня оптической накачки вплоть до максимально использовавшихся значений это время может достигать величины  $\tau_0 \approx 42 \pm 2$  пс, что продемонстрировано на рис. 2b, где показано временное изменение интенсивности полосы пространственно прямого оптического перехода D в различных магнитных полях.

Из-за особенностей перестройки зонной структуры исследуемого образца при высоких уровнях оптической накачки необходимо было тщательно сравнивать спектры, полученные при одинаковых условиях возбуждения в нулевом и отличном от нуля внешнем магнитном поле. На рисунке 3 показано, как изменяется энергия излучения полосы фотолюминесценции пространственно прямого оптического перехода со временем в различных магнитных полях  $E(B)$  относительно ее энергии в нулевом магнитном поле  $E(0)$  (Зеемановский сдвиг) при возбуждении мощными лазерными импульсами, аналогичными импульсам возбуждения, использованным при получении результатов, представленных на рис. 2b. Видно, что

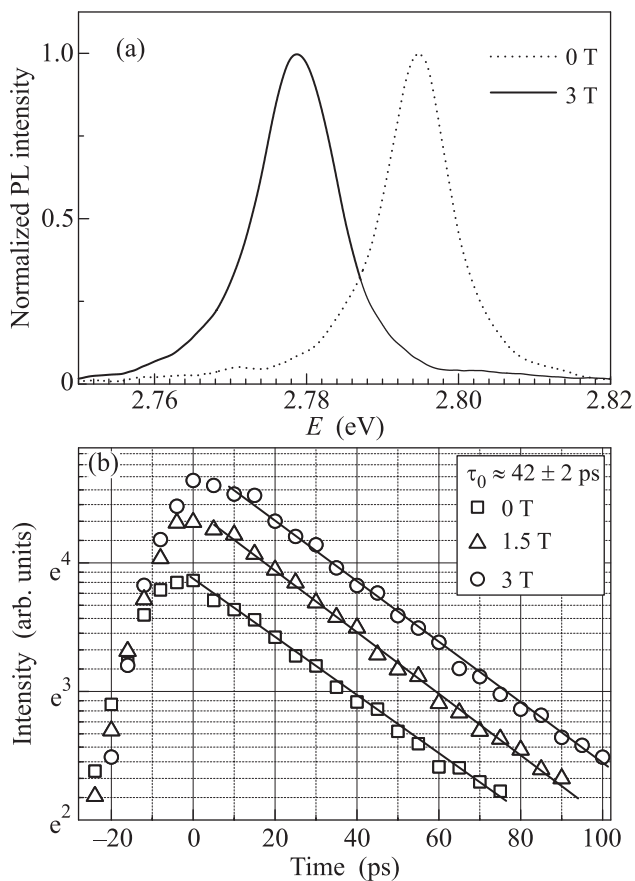


Рис. 2. (а) – Проинтегрированные по времени спектры фотолюминесценции сверхрешетки второго типа  $Zn_{0.99}Mn_{0.01}Se/Be_{0.93}Mn_{0.07}Te$  в спектральной области пространственно прямого оптического перехода D при низком уровне возбуждения в режиме плоских зон в нулевом магнитном поле и в поле 3 Т. (b) – Зависимость интенсивности полосы оптического перехода D сверхрешетки  $Zn_{0.99}Mn_{0.01}Se/Be_{0.93}Mn_{0.07}Te$  от времени в различных магнитных полях. Возбуждение в нулевой момент времени мощным фемтосекундным лазерным импульсом с плотностью энергии  $\sim 0.25$  мДж/см<sup>2</sup> на поверхности образца. Из наклона прямых линий на рисунке сделана оценка времени жизни фотовозбужденных дырок на нижайшем надбарьерном уровне  $d1$   $\tau_0 \approx 42 \pm 2$  пс

после возбуждения в нулевой момент времени наблюдаются уменьшения Зеемановских сдвигов, связанные с разогревом магнитной подсистемы ионов Mn в слое  $Zn_{0.99}Mn_{0.01}Se$ . Оценка величины нагрева по изменению Зеемановского сдвига на временах  $\gtrsim 40$  пс после возбуждения дает значение повышения спиновой температуры  $\sim 0.5$  К. Эти изменения могут быть описаны экспоненциальной зависимостью от времени (сплошные кривые на рис. 3). Уменьшение Зеемановского сдвига происходит за время  $\tau \approx 17 \pm 2$

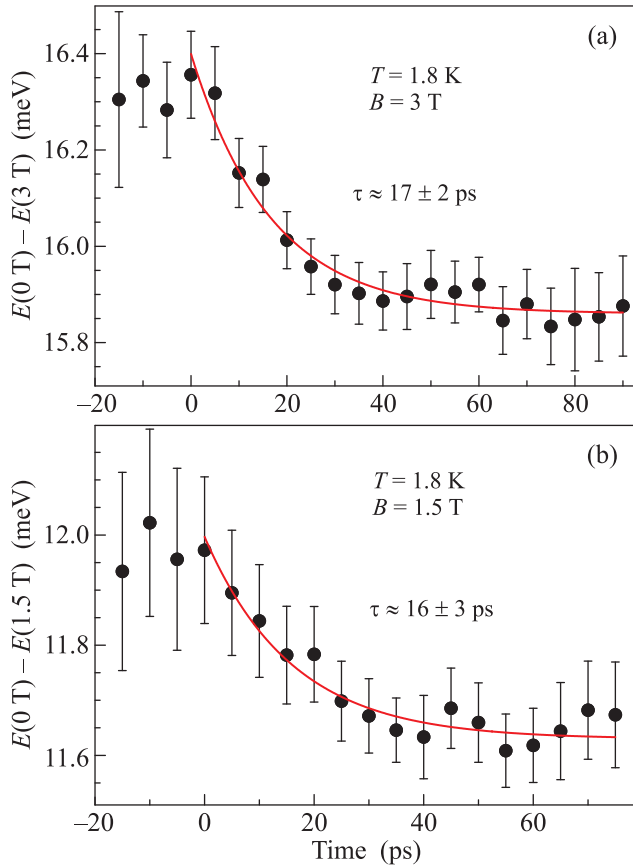


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость Зеемановского сдвига полосы люминесценции пространственно прямого оптического перехода от времени в сверхрешетке  $\text{Zn}_{0.99}\text{Mn}_{0.01}\text{Se}/\text{Be}_{0.93}\text{Mn}_{0.07}\text{Te}$  в магнитном поле 3 Т (а) и 1.5 Т (б) после возбуждения в нулевой момент времени мощным фемтосекундным лазерным импульсом с плотностью энергии  $\sim 0.25$  мДж/см<sup>2</sup> на поверхности образца. Сплошные кривые – экспоненциальные зависимости с временами  $\tau$

и  $\approx 16 \pm 3$  пс в магнитных полях 3 (рис. 3а) и 1.5 Т (рис. 3б), соответственно. Следует заметить, что эти времена существенно меньше времени жизни фотовозбужденных дырок в слое  $\text{Zn}_{0.99}\text{Mn}_{0.01}\text{Se}$   $\tau_0 \approx 42 \pm 2$  пс, определенном по кинетике интенсивности люминесценции из данных, приведенных на рис. 2б, т.е. за время своей жизни в слое дырки успевают передать свою энергию спиновой подсистеме ионов марганца.

Таким образом, в работе впервые были выполнены прямые измерения времен пикосекундной кинетики процесса передачи энергии и спина от фотовозбужденных носителей за счет обменного взаимодействия с локализованными спинами ионов  $\text{Mn}^{2+}$  в полумангнитных полупроводниковых гетерострукту-

рах  $\text{Zn}_{0.99}\text{Mn}_{0.01}\text{Se}/\text{Be}_{0.93}\text{Mn}_{0.07}\text{Te}$  и определено время передачи энергии и спина  $\tau \approx 17 \pm 2$  пс.

Работа частично поддержана проектом Российского фонда фундаментальных исследований # 17-02-00959.

1. *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, ed. by D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth, Springer, Heidelberg (2002).
2. *Spin Physics in Semiconductors*, ed. by M. I. Dyakonov, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg (2008).
3. *Introduction to the Physics of Diluted Magnetic Semiconductors*, ed. by J. Kossut and J. A. Gaj, Springer, Heidelberg (2010).
4. *Diluted Magnetic Semiconductors*, ed. by J. K. Furdyna and J. Kossut, in series *Semiconductors and Semimetals*, Academic Press, London (1988), v. 25.
5. J. A. Gaj, R. Planel, and G. Fishman, *Solid State Commun.* **29**, 435 (1979).
6. D. Keller, D. R. Yakovlev, B. König, W. Ossau, Th. Gruber, A. Waag, L. W. Molenkamp, and A. V. Scherbakov, *Phys. Rev. B* **65**, 035313 (2002).
7. T. Dietl, in *Handbook of semiconductors*, ed. by S. Mahajan, North-Holland, Amsterdam (1994), v. 3b, p. 1252.
8. M. K. Kneip, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. A. Maksimov, I. I. Tartakovskii, D. Keller, W. Ossau, L. W. Molenkamp, and A. Waag, *Phys. Rev. B* **73**, 035306 (2006).
9. S. A. Crooker, D. D. Awschalom, J. J. Baumberg, F. Flack, and N. Samarth, *Phys. Rev. B* **56**, 7574 (1997).
10. R. Akimoto, K. Ando, F. Sasaki, S. Kobayashi, and T. Tani, *J. Appl. Phys.* **84**, 6318 (1998).
11. M. K. Kneip, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. A. Maksimov, I. I. Tartakovskii, D. Keller, W. Ossau, L. W. Molenkamp, and A. Waag, *Phys. Rev. B* **73**, 045305 (2006).
12. W. Farah, D. Scalbert, and M. Nawrocki, *Phys. Rev. B* **53**, R10461 (1996).
13. A. Hundt, J. Puls, A. V. Akimov, Y. H. Fan, and F. Henneberger, *Phys. Rev. B* **72**, 033304 (2005).
14. A. V. Akimov, A. V. Scherbakov, D. R. Yakovlev, I. A. Merkulov, M. Bayer, A. Waag, and L. W. Molenkamp, *Phys. Rev. B* **73**, 165328 (2006).
15. С. В. Зайцев, В. Д. Кулаковский, А. А. Максимов, Д. А. Пронин, И. И. Тартаковский, Н. А. Гишпиус, Т. Литц, Ф. Фишер, А. Ваг, Д. Р. Яковлев, В. Оссау, Г. Ландвер, *Письма в ЖЭТФ* **66**, 351 (1997).
16. А. А. Максимов, И. И. Тартаковский, Д. Р. Яковлев, М. Байер, А. Ваг, *Письма в ЖЭТФ* **83**, 173 (2006).
17. А. А. Максимов, С. В. Зайцев, Е. В. Филатов, А. В. Ларионов, И. И. Тартаковский, Д. Р. Яковлев, А. Ваг, *Письма в ЖЭТФ* **88**, 587 (2008).

18. E. V. Filatov, S. V. Zaitsev, I. I. Tartakovskii, A. A. Maksimov, D. R. Yakovlev, and A. Waag, Phys. Stat. Sol. (c) **7**, 1533 (2010).
19. J. Debus, A. A. Maksimov, D. Dunker, D. R. Yakovlev, E. V. Filatov, I. I. Tartakovskii, V. Yu. Ivanov, A. Waag, and M. Bayer, Phys. Stat. Sol. B **251**(9), 1694 (2014).
20. A. A. Maksimov, D. R. Yakovlev, J. Debus, I. I. Tartakovskii, A. Waag, G. Karczewski, T. Wojtowicz, J. Kossut, and M. Bayer, Phys. Rev. B **82**, 035211 (2010).