

САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

На правах рукописи

Литвяк Валентина Михайловна

**ЭФФЕКТЫ, НАБЛЮДАЕМЫЕ В ПОЛУПРОВОДНИКАХ ПРИ ГЛУБОКОМ  
ОХЛАЖДЕНИИ СПИНОВ ЯДЕР**

Специальность 1.3.8. Физика конденсированного состояния

Диссертация на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Научный руководитель  
Кандидат физико-математических наук  
Чербунин Роман Викторович

Санкт-Петербург

2022

## Оглавление

	Стр.
<b>Введение</b> .....	5
<b>Глава 1. Ядерная спиновая система в объемных кристаллах n-GaAs</b> .....	<b>11</b>
1.1 Постановка задачи. Механизмы релаксации электронного спина в n-GaAs.....	11
1.2 Основные типы взаимодействий с участием ядерных спинов .....	13
1.2.1 Ядерный спин .....	13
1.2.2 Диполь-дипольное взаимодействие .....	15
1.2.3 Сверхтонкое взаимодействие. Поле Оверхаузера и поле Найта .....	16
1.2.4 Спиновая диффузия .....	18
1.2.5 Основные принципы ядерного магнитного резонанса в твердом теле. Зеемановское взаимодействие.....	19
1.2.6 Квадрупольное взаимодействие .....	23
1.3 Процессы релаксации ядерных спинов в объёмных кристаллах n-GaAs.....	27
1.3.1 Спин-спиновая релаксация.....	27
1.3.2 Спин-решеточная релаксация .....	28
1.4 Методы поляризации ядерных спинов в полупроводниках.....	31
1.4.1 Эффект Оверхаузера .....	31
1.4.2 Ядерный солид-эффект.....	32
1.4.3 Поляризация ядерных спинов в полупроводниках методом оптического охлаждения	33
1.5 Ядерный магнитный порядок в полупроводниковых структурах.....	34
1.6 Концепция ядерной спиновой температуры.....	36
1.7 Концепция ядерного спинового полярона.....	40

1.8	Роль квадрупольных взаимодействий ядерных спинов в квантовых точках, квантовых ямах, образцах с микрорезонаторами и в объемных образцах .....	42
1.8.1	Роль квадрупольных эффектов в квантовых точках.....	44
1.8.2	Роль квадрупольных эффектов в квантовых ямах .....	47
1.8.3	Роль квадрупольных эффектов в объемных материалах группы A3B5 .....	49
1.9	Влияние квадрупольных эффектов на величину локального поля .....	50
1.10	Отогрев ядерных спинов переменным магнитным полем .....	52
1.11	Охлаждение ядерных спинов во вращающейся системе координат.....	55
<b>Глава 2. Изучаемые образцы и экспериментальные методики.....</b>		<b>58</b>
2.1	Спектроскопия отогрева ядерных спинов .....	58
2.1.1	Изучаемые образцы.....	58
2.1.2	Измерение степени поляризации фотолюминесценции.....	59
2.1.3	Детектирование ядерной поляризации по эффекту Ханле .....	64
2.1.4	Методика спектроскопии отогрева ядерных спинов .....	70
2.2	Адиабатическое размагничивание во вращающейся системе координат .....	77
2.2.1	Изучаемый образец и экспериментальная установка.....	77
2.2.2	Методика экспериментов по адиабатическому охлаждению ядерных спинов во вращающейся системе координат .....	79
<b>Глава 3. Определение величины локального поля ядерных спинов в объемном образце n-GaAs.....</b>		<b>82</b>
3.1	Использование установки по спектроскопии отогрева ядерных спинов для измерения локального поля.....	82
3.2	Экспериментальные результаты .....	84
3.3	Выводы главы .....	85
<b>Глава 4. Спектры поглощения ядерных спинов объемных образцов n-GaAs.....</b>		<b>86</b>

4.1	Спектры поглощения в нулевом магнитном поле .....	86
4.2	Анализ спектров поглощения для образца S2.....	89
4.3	Анализ спектров поглощения для образца S1 .....	95
4.3.1	Спектр поглощения в нулевом магнитном поле .....	95
4.3.2	Спектры поглощения в четырех экспериментальных конфигурациях. Общий вид .....	96
4.3.3	Теоретический анализ спектров поглощения, измеренных во внешних магнитных полях для образца S1 .....	99
4.4	Выводы главы .....	108
<b>Глава 5. Селективное охлаждение ядерных спинов квантовой ямы GaAs с помощью адиабатического размагничивания во вращающейся системе координат .....</b>		<b>109</b>
5.1	Охлаждение ядер изотопа $^{75}\text{As}$ до рекордно низких спиновых температур методом адиабатического размагничивания во вращающейся системе координат .....	109
5.2	Расчет спин-спинового вклада в величину локального поля.....	112
5.3	Определение квадрупольного вклада в величину локального поля .....	116
5.4	Выводы главы .....	118
<b>Заключение.....</b>		<b>120</b>
<b>Список литературы .....</b>		<b>122</b>
<b>Список рисунков .....</b>		<b>127</b>
<b>Список таблиц .....</b>		<b>134</b>

## Введение

**Актуальность темы.** На сегодняшний день вся электроника работает на переносе заряда электрона (электрическом токе). Однако помимо заряда, электрон имеет такую фундаментальную характеристику, как спин – его собственный момент движения. Наличие спина у электрона открывает возможность использовать спин в качестве альтернативы электрическому току, что позволит создавать новые устройства, к примеру, элементы памяти с быстрой скоростью переключения, новые методы кодировки информации и т. д. [1]. Явлениями, связанными с использованием спина электрона в разработке новых устройств, занимается популярное и быстроразвивающееся на сегодняшний день направление в науки - спинтроника. Одним из предметов изучения спинтроники является изучение явлений, возникающих в магнитоупорядоченных структурах при приложении внешних статических и переменных магнитных полей. Магнитное упорядочение может быть разным в зависимости от характера взаимодействия между электронами. Хорошо известны ферромагнитное и антиферромагнитное упорядочение атомов, также в конце 20-го века активно изучались спиновые волны. Однако процессу перехода электронных спинов в магнитный порядок препятствует процесс релаксации. Существуют различные механизмы электронной спиновой релаксации. В частности, одним из главных факторов, влияющих на время электронной спиновой релаксации в полупроводниках и в полупроводниковых наноструктурах являются ядерные спиновые флуктуации. Электронные спины прецессируют во флуктуирующих по направлению и амплитуде локальных полях, созданных ядрами решетки, вследствие чего теряют свою когерентность [2,3]. Влияние таких флуктуации возможно подавить, и, тем самым увеличить время электронной спиновой релаксации, если охладить ядерную спиновую систему (ЯСС) до температур, при которых возможен переход ядерных спинов в магнитный порядок. Такой переход может быть обусловлен диполь-дипольным взаимодействием между спинами ядер решетки. В данном случае ядерный спиновый порядок возможен при спиновых температурах порядка нанокельвин [4]. Но существует концепция ядерного спинового полярона, в которой переход ядер в упорядоченное состояние может происходить за счет их сверхтонкого взаимодействия с локализованными на донорных центрах электронными спинами [4,5]. Спиновая температура, необходимая для образования ядерного спинового полярона, имеет величину порядка  $10^{-7}$  К. Такую температуру возможно экспериментально получить методом оптического охлаждения с последующим адиабатическим размагничиванием в локальное поле ядерных спинов  $B_L$  [6,7]. Локальное поле ограничивает величину спиновой температуры, до которой возможно охладить ЯСС с помощью

адиабатического размагничивания. Но при наличии квадрупольных взаимодействий в изучаемом образце, величина локального поля определяется как диполь-дипольным, так и квадрупольным взаимодействиями. Поэтому квадрупольные эффекты увеличивают значение минимальной возможной ядерной спиновой температуры и тем самым препятствуют переходу спинов ядер в поляронное состояние. Возможность экспериментально детектировать проявление квадрупольных взаимодействий является важным шагом на пути к получению минимальных ядерных спиновых температур в полупроводниках. Также, наряду с этой задачей, необходимо уметь понижать ядерную спиновую температуру до минимально возможных величин даже при наличии квадрупольных взаимодействий. Это возможно сделать с помощью оптического охлаждения и дальнейшего адиабатического размагничивания в лабораторной, а также во вращающейся системах координат. Ранее были достигнуты спиновые температуры порядка микрокельвин с использованием адиабатического размагничивания в лабораторной системе координат [6,7], однако они являются недостаточно низкими для образования ядерного спинового полярона.

**Целью** данной работы является изучение термодинамических характеристик и магнитных флуктуаций оптически охлажденной спиновой системы ядер мышьяка и галлия в эпитаксиальных слоях *n*-GaAs, поиск путей достижения минимальных ядерных спиновых температур.

Для достижения поставленной цели решались следующие **задачи**:

1. Создать экспериментальную установку по глубокому охлаждению ядерных спинов объемных кристаллов *n*-GaAs, включающую в себя оптическое охлаждение с последующим адиабатическим размагничиванием.
2. На основе этой установки реализовать методику спектроскопии отогрева ядерных спинов переменными магнитными полями в четырех различных конфигурациях переменного и статического магнитных полей.
3. Разработать методику обработки экспериментальных данных для получения величин спиновых температур, достигнутых в данном эксперименте, а также для получения величин скорости отогрева ядерных спинов переменным магнитным полем на различных частотах.
4. Из полученных зависимостей скоростей отогрева от частоты переменного магнитного поля (из спектров поглощения) извлекать информацию, необходимую для определения вида квадрупольного взаимодействия.
5. Реализовать селективное охлаждение ядерных спинов в квантовой яме GaAs/AlGaAs во вращающейся системе координат. Рассчитать и сопоставить с экспериментом вклады диполь-дипольного и квадрупольного резервуаров в теплоемкость спиновой системы ядер

мышьяка. Оценить эффективность данного метода для достижения спиновых температур, необходимых для перехода ядерных спинов в магнитоупорядоченные состояния.

**Основные положения, выносимые на защиту:**

1. В эпитаксиальных слоях объемного  $n$ -GaAs присутствуют неконтролируемые деформации, которые приводят к появлению дополнительного вклада в локальное ядерное поле. Этот вклад связан с квадрупольными взаимодействиями.
2. Квадрупольное взаимодействие ядер в объемных кристаллах  $n$ -GaAs в нулевом магнитном поле приводит к появлению трех пиков в спектре поглощения переменного магнитного поля ядерными спинами. Для заданного квадрупольного расщепления положения пиков определяются их квадрупольными константами. Измерение спектров поглощения ядерных спинов в зависимости от величины постоянного магнитного поля при различных взаимных направлениях постоянного и переменного магнитных полей позволяют определить тип и величину квадрупольного взаимодействия.
3. Спин-спиновый резервуар ядер мышьяка в арсениде галлия в сильном внешнем магнитном поле следует предсказаниям теории спиновой температуры во вращающейся системе координат. При этом локальные поля определяются секулярной частью диполь-дипольного и квадрупольного взаимодействий и зависят от направления внешнего магнитного поля.

**Научная новизна.** Все представленные результаты являются новыми. Следует отметить следующие важные результаты:

1. Впервые были получены спектры поглощения охлажденной ЯСС в четырех экспериментальных конфигурациях для объемного кристалла  $n$ -GaAs.
2. Теоретический анализ полученных спектров поглощения позволяет достоверно определить различные вклады в квадрупольное взаимодействие ядерных спинов изучаемого образца.
3. Селективное охлаждение изотопа  $^{75}\text{As}$  квантовой ямы GaAs/AlGaAs в экспериментах по охлаждению ядерных спинов во вращающейся системе координат представлено впервые. Полученная спиновая температура  $\theta_N = 0.54 \mu\text{K}$  является рекордно низкой.

**Научная и практическая значимость.** Эксперименты по спектрам поглощения охлажденной ЯСС в четырех экспериментальных конфигурациях и их теоретическая обработка позволяют однозначно определить вид и величину квадрупольного взаимодействия, которое увеличивает локальное поле и тем самым препятствует достижению минимально возможных спиновых температур. Зная источник квадрупольных взаимодействий, можно искать пути его

устранения и, устранив их, получить возможность понизить температуру ЯСС до значений, необходимых для перехода ядерных спинов в магнитоупорядоченные состояния.

**Степень достоверности** обосновывается публикациями оригинальных результатов в научных журналах, а также обсуждением результатов на научных семинарах и на международных конференциях.

**Апробация работы.** Основные результаты работы докладывались автором на научных семинарах в лаборатории Оптики спина им. И. Н. Уральцева, на низкоразмерном семинаре в ФТИ им. А.Ф. Иоффе, а также на конференциях и рабочих встречах:

1. В. М. Литвяк, Р. В. Чербунин, В. К. Калевич, К. В. Кавокин «Determination of the local field in the nuclear spin system of n-type GaAs». Международная конференция «Современные нанотехнологии и нанофотоника для науки и производства»; Владимир/Суздаль, 9-13 ноября 2017 г.
2. В. М. Литвяк, Р. В. Чербунин, В. К. Калевич, К. В. Кавокин «Kinetic and thermodynamic local fields acting on nuclear spins in semiconductors». International conference of the physics in semiconductors (ICPS); Монпелье, Франция, 29 июля —3 августа 2018г.
3. В. М. Литвяк, Р. В. Чербунин, В. К. Калевич, К. В. Кавокин «Warm up spectroscopy applied to study nuclear spin fluctuations in semiconductors». International conference on physics of light-matter coupling in nanostructures (PLMCN); Суздаль/Москва, 2-6 июля 2019 г.
4. В. М. Литвяк, Р. В. Чербунин, В. К. Калевич, К. В. Кавокин «Approaching the nuclear spin polaron». Workshop ICRC TRR160; Дортмунд, Германия, 7-8 октября 2019 г.
5. В. М. Литвяк, Р. В. Чербунин, В. К. Калевич, К. В. Кавокин «Observation of different interactions in absorption spectra of a cooled nuclear spin system». Online Workshop ICRC TRR160; 21-22 сентября 2020 г.
6. В. М. Литвяк, Р. В. Чербунин, В. К. Калевич, К. В. Кавокин «Determination of the quadrupole splitting in bulk n-GaAs by warm-up spectroscopy». 28th International Symposium "Nanostructures: Physics and Technology" (NANO'2020); 28 сентября – 2 октября 2021 г. (онлайн формат).
7. В. М. Литвяк, Р. В. Чербунин, В. К. Калевич, М. Владимирова, К. В. Кавокин «Развитие спектроскопии отогрева ядерных спинов в объемных кристаллах n-GaAs». International conference PhysicA.SPb/2021; Санкт-Петербург, 18-22 октября 2021 г. (онлайн формат).

**Личный вклад.** Все экспериментальные результаты по спектрам поглощения и их обработка были получены автором лично под руководством к. ф.-м. н. Чербунина Р. В. В работе по селективному охлаждению изотопов ядер в квантовой яме GaAs/AlGaAs во вращающейся системе координат (гл.5) автор принимал участие в экспериментах, сделанных в лаборатории



технического университета Дортмунда (Германия), и выполнил расчёты локальных полей усеченных диполь-дипольного и квадрупольного взаимодействий.

**Публикации.** Основные результаты по теме диссертации изложены в 4 печатных изданиях. Все журналы индексируемы системами цитирования Web of Science и Scopus.

Список публикаций автора диссертации:

1. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kavokin K. V. and Kalevich V. K. Determination of the local field in the nuclear spin system of n - type GaAs // IOP Conf. Series: Journal of Physics. – 2018. – Т. 951. – С. 012006.
2. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kavokin K. V. and Kalevich V. K. Determination of the Quadrupole Splitting in Bulk n - GaAs by Warm - Up Spectroscopy // Semiconductors. – 2020. – Т. 54. – С. 1728-1729.
3. Kotur M., Tolmachev D. O., Litvyak V. M., Kavokin K. V., Suter D., Yakovlev D. R. and Bayer M. Ultra - deep optical cooling of coupled nuclear spin - spin and quadrupole reservoirs in a GaAs/(Al, Ga)As quantum well // Communications Physics. – 2021. – Т. 4. - С. 193.
4. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kalevich V. K., Lihachev A. I., Nashchekin A. V., Vladimirova M. and Kavokin K.V. Warm-up spectroscopy of quadrupole-split nuclear spins in n-GaAs epitaxial layers // Physical Review B. – 2021. – Т. 104, вып. 23. – С. 235201.

Автор диссертации имеет еще 4 публикации, не относящиеся к теме диссертации.

**Объем и структура работы.** Диссертация состоит из введения, пяти глав и заключения. В первой главе представлен обзор литературы, посвященный основным характеристикам ЯСС в структурах на основе GaAs. Подробно описаны виды взаимодействий, в которых участвуют ядерные спины, их механизмы релаксации и способы поляризации, а также основы оптической ориентации электронных и ядерных спинов. Также описана концепция ядерной спиновой температуры и модель ядерного спинового полярона. Часть первой главы посвящена роли квадрупольных взаимодействий в полупроводниковых наноструктурах. В конце главы подробно представлены основные физические принципы, необходимые для понимания оригинальной части диссертации: спектроскопии отогрева ядерных спинов и экспериментов по адиабатическому размагничиванию во вращающейся системе координат.

Во второй главе рассмотрены исследуемые образцы, экспериментальные установки, на которых были проведены эксперименты по спектроскопии отогрева ядерных спинов и по

адиабатическому охлаждению ядерных спинов во вращающейся системе координат, а также методики экспериментов и способы обработки экспериментальных данных.

В третьей главе представлены оригинальные экспериментальные результаты по измерению локального поля в объёмном  $n$ -GaAs.

В четвертой главе представлены оригинальные экспериментальные результаты по спектроскопии отогрева ядерных спинов, которыми являются, в частности, спектры поглощения в четырех экспериментальных конфигурациях и способ их обработки. Также описана теоретическая модель, с помощью которой был проведен анализ спектров поглощения и определены вид и величина квадрупольного взаимодействия. В конце главы приведены результаты такого анализа.

В пятой главе представлены оригинальные экспериментальные результаты по селективному охлаждению изотопов ядер в квантовой яме GaAs/AlGaAs, а также расчеты локальных полей усеченных диполь-дипольного и квадрупольного взаимодействий. В частности, обсуждается получение рекордно низких ядерных спиновых температур.

Полный объем диссертации составляет 134 страницы с 49 рисунками и 6 таблицами. Список литературы содержит 59 наименований.

## Глава 1. Ядерная спиновая система в объемных кристаллах *n*-GaAs

### 1.1 Постановка задачи. Механизмы релаксации электронного спина в *n*-GaAs

Основной мотивацией для изучения спиновых эффектов во многих работах является идея использовать электронный спин в качестве носителя информации, а также в качестве элемента переключения в логике. Она основывается на возможности управления не зарядом электрона (как это делается в микро и нанoeлектронике), а его спиновым состоянием. Для достижения таких практических целей важно уметь контролировать процессы релаксации электронного спина.

Структуры на основе GaAs являются основными объектами изучения спиновых явлений на протяжении почти 30 лет. Процессы релаксации спина электрона, являющиеся основной преградой на пути к созданию спиновой памяти, хорошо изучены в работах [3,8]. В работе [3] на примере электронов, локализованных в квантовых точках показано, что средний электронный спин релаксирует за счет сверхтонкого взаимодействия с ядерными спинами. Релаксация проходит в два этапа. На первом этапе ( $t < T_{\Delta} = 1$  нс) средняя проекция электронного спина на ось накачки релаксирует за счет прецессии электронного спина в сверхтонком поле замороженных флуктуаций ядерных спинов. На этом этапе теряется 2/3 от полной электронной спиновой поляризации. Остальная 1/3 релаксирует за время  $T_N = 1$  мкс благодаря дисперсии частот прецессий ядерных спинов в неоднородном поле Найта в пределе одной квантовой точки. Такая неоднородность возникает из-за неоднородного распределения волновой функции электрона, локализованного в квантовой точке. Однако обсуждается возможность подавления процесса релаксации в замороженных ядерных флуктуациях включением внешнего продольного магнитного поля.

Для случая объемных кристаллов *n*-GaAs процессы релаксации электронного спина описаны в работе [8]. В слабелегированных образцах с концентрациями донорной примеси в диапазоне от  $n_D = 10^{14}$  см<sup>-3</sup> до  $n_D = 2 * 10^{16}$  см<sup>-3</sup>, соответствующей переходу диэлектрик-металл (в англоязычной литературе – metal-insulator transition, MIT), где электрон можно считать локализованным на доноре, основным процессом спиновой релаксации также как и в работе [3] является прецессия электронов в флуктуирующих сверхтонких ядерных полях. Для концентраций доноров  $n_D > 2 * 10^{16}$  см<sup>-3</sup> электроны являются уже делокализованными и релаксируют по спину через механизм Дьяконова-Переля. Зависимость времен релаксации от концентрации доноров представлены на рисунке 1.

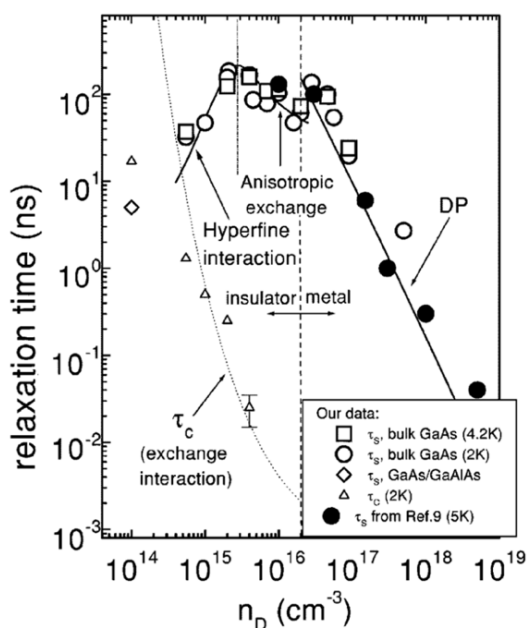


Рисунок 1 – Зависимость времени релаксации среднего электронного спина от концентрации донорной примеси в объемных образцах n-GaAs. Символами показаны экспериментальные результаты, сплошной линией показан расчет. Пунктирной линией показана зависимость времени корреляции электронного спина  $\tau_c$  от концентрации доноров [8].

Для достижения цели увеличения времени электронной спиновой релаксации разумно стартовать со случаев, где оно имеет максимальное значение. Из рисунка видно, что максимальные времена релаксации возможны при концентрациях доноров  $n_D \sim 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ , где механизмами релаксации является прецессия электронного спина в флуктуирующих ядерных полях и анизотропное обменное взаимодействие, и при  $n_D \sim 3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ , где электронный спин релаксирует по механизму Дьяконова-Переля.

В данной диссертации выбраны структуры с концентрациями доноров  $n_D \sim 2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ , в которых основным механизмом релаксации электронного спина является его взаимодействие с флуктуирующими ядерными полями. Одним из способов увеличения времени релаксации электронного спина в таких структурах является подавление ядерных спиновых флуктуаций. Подавление флуктуаций возможно при переходе ядерных спинов в магнитный порядок, который устанавливается при ядерных спиновых температурах порядка долей микрокельвин. Понижение спиновых температур до таких величин, а также выявление квадрупольных взаимодействий в образце, которые увеличивают локальное поле и тем самым ограничивают минимально возможную ядерную спиновую температуру, являются предметами изучения в оригинальной части данной диссертации.

## 1.2 Основные типы взаимодействий с участием ядерных спинов

### 1.2.1 Ядерный спин

Основы ядерного магнетизма были описаны в работе Ф. Блоха в 1955 г. [9]. Как известно, атомное ядро состоит из нуклонов: протонов и нейтронов, которые движутся внутри ядра по различным траекториям. Ядра с четным числом нуклонов имеют целый спин ( $I = 0, 1, 2, \dots$ ). Ядра с нечетным количеством нуклонов всегда имеют полуцелый спин ( $I = 1/2, 3/2, \dots$ ). Те ядра, у которых четное число нейтронов и четное число протонов, всегда имеют нулевой спин благодаря взаимной компенсации моментов нуклонов в основном состоянии. Ядра, которые имеют ненулевой спин, обладают магнитным моментом  $\mu$ . Поскольку ядерные спины в основном рассматривают через их взаимодействие с различными магнитными полями, то удобнее записать ядерный магнитный момент через его гиромагнитное отношение:

$$\mu = \gamma_N \hbar I, \quad (1.1)$$

где  $\hbar$  - постоянная Планка,  $\gamma_N$  – гиромагнитное отношения ядра.

Гиромагнитное отношения является коэффициентом пропорциональности между магнитным полем  $B$  и частотой прецессии  $\omega$  ядра в нем и является фундаментальной характеристикой атомного ядра:

$$\omega = \gamma_N B. \quad (1.2)$$

Для ядер изотопов кристалла GaAs, который является предметом изучения в данной диссертации, гиромагнитные отношения приведены в таблице 1.

Таблица 1 – Гиромагнитные отношения ядер изотопов кристалла GaAs.

Изотоп	$\gamma_N, \frac{10^7 \text{ рад}}{\text{Тл} * \text{с}}$
$^{71}\text{Ga}$	8.2
$^{69}\text{Ga}$	6.4
$^{75}\text{As}$	4.5

Также ядра, имеющие спин  $I \geq 1$ , обладают квадрупольным электрическим моментом  $eQ$  ( $e$  – единичный электрический заряд,  $Q$  – константа квадрупольного взаимодействия, которая характеризует меру отклонения распределения ядерного заряда от сферической симметрии). Квадрупольный момент ядра взаимодействует с неоднородным электрическим полем, возникающим вокруг ядра. Источниками такого неоднородного поля могут служить различные факторы: деформация кристаллической решетки, внешнее или внутреннее электрическое поле или строение кристаллической решетки.

Квантовое состояние ядра можно охарактеризовать собственными значениями оператора полного спина  $\hat{I}^2$ , которые равны  $\hbar^2 I(I + 1)$ , а также собственными значениями оператора  $z$ -проекции  $\hat{I}_z$ , равными  $\hbar m$  ( $m$  – магнитное квантовое число, которое принимает значения от  $-I$  до  $I$ ). Операторы  $x$ - и  $y$ - проекций ядерного спина  $\hat{I}_x$  и  $\hat{I}_y$  не коммутируют с операторами  $\hat{I}^2$  и  $\hat{I}_z$  и их удобнее представить в виде:

$$\hat{I}_{\pm} = \hat{I}_x \pm i\hat{I}_y. \quad (1.3)$$

При этом операторы  $\hat{I}_{\pm}$  ответственны за переход ядра из состояния с проекцией на ось  $Z$   $m$  в состояние с проекцией  $(m \pm 1)$ . Собственные значения этих операторов равны  $\hbar\sqrt{(I \mp m)(I \pm m + 1)}$ . В частности, операторы  $\hat{I}_{\pm}$  отвечают за переходы ядер между Зеемановскими уровнями энергии по действием переменных магнитных полей [10].

Для кристаллов GaAs  $I = \frac{3}{2}$ , соответственно во внешнем магнитном поле ядерные спины распределены по четырем уровням энергий, каждый из уровней характеризуется проекцией ядерных спинов на направление поля:  $m = (-\frac{3}{2}; -\frac{1}{2}; \frac{1}{2}; \frac{3}{2})$ , а в отсутствии внешнего магнитного поля состояние ядерного спина четырехкратно вырождено.

Стоит также отметить малость ядерного магнитного момента по сравнению с электронным (ядерный магнитный момент в тысячу раз меньше, чем электронный), а также малость статической ядерной магнитной восприимчивости (она в  $10^6$  -  $10^8$  раз меньше, чем электронная восприимчивость) [11]. Эти факты говорят о том, что изучение явлений, связанных с ядерным магнетизмом, является более сложным, чем изучение электронного магнетизма.

Наличие у ядра собственного магнитного момента позволяет ему участвовать в различных типах взаимодействий, которые будут описаны в данной главе.

### 1.2.2 Диполь-дипольное взаимодействие

Эффективность оптического охлаждения определяется взаимодействиями внутри ядерной спиновой системы. Ядерные спины в полупроводниках взаимодействуют через диполь-дипольное взаимодействие. Энергия взаимодействия  $i$ -го и  $j$ -го ядра, имеющие спины  $I_i$  и  $I_j$  и расположенные друг от друга на расстоянии  $r_{ij}$ , имеет вид:

$$W_{i,j} = \frac{\gamma_i \gamma_j \hbar^2}{r_{ij}^3} \left( I_i I_j - 3 \frac{(I_i r_{ij})(I_j r_{ij})}{r_{ij}^2} \right). \quad (1.4)$$

Энергия  $i$ -го ядра выражается через эффективное магнитное поле  $B_{Li}$ , которое создают на  $i$ -ом ядре соседние ядерные спины:

$$E_i = \gamma_i \hbar I_i B_{Li}. \quad (1.5)$$

Так,  $i$ -й ядерный спин прецессирует в поле  $B_{Li}$  с периодом прецессии, равном  $T_2 \sim 10^{-4}$  с для GaAs. Через каждые промежутки времени, равные  $T_2$ , величина и направление эффективного поля  $B_{Li}$  меняется, и усредненное по времени поле равно нулю. Поэтому рассматривают средний квадрат этого поля, который уже не равен нулю. Такое поле называют локальным полем. Если рассматривать ядерную спиновую систему в целом, а не конкретное ядро, то средним квадратом локального поля можно считать сумму  $B_L^2 = \sum_{i=1}^N \langle B_{Li}^2 \rangle$ , где  $N$  – количество ядер. В объемном образце GaAs (который является предметом исследования в данной диссертации) величина квадрата локального поля составляет  $B_L^2 = 2.1 \text{ Гс}^2$  [12].

Период прецессии ядерных спинов в локальных полях задает порядок величины времени спин-спиновой релаксации  $T_2$ . За это время устанавливается равновесное состояние внутри ЯСС, которое описывается ядерной спиновой температурой. Важным моментом является тот факт, что локальное поле характеризует также и вклад спин-спиновых взаимодействий в теплоемкость ядерной спиновой системы и тем самым определяет минимальную величину спиновой температуры  $\Theta_{Nf}$ , до которой возможно охладить ядерные спины методом адиабатического размагничивания из начального магнитного поля  $B_i$  в конечное поле  $B_f$ , сопоставимое с величиной локального поля  $B_L$  [13]:

$$B_i \Theta_{Nf} = \Theta_{Ni} \sqrt{B_f^2 + B_L^2}, \quad (1.6)$$

где  $\Theta_{Ni}$  – начальная ядерная спиновая температура, достигнутая с помощью оптического охлаждения в поле  $B_i$ .

Метод адиабатического размагничивания использовался для глубокого охлаждения ЯСС в оригинальной части диссертации и будет обсуждаться ниже.

### 1.2.3 Сверхтонкое взаимодействие. Поле Оверхаузера и поле Найта

Существует два типа сверхтонкого взаимодействия: анизотропное, обусловленное диполь-дипольным взаимодействием магнитных моментов ядра и электрона и изотропное, вызванное тем, что плотность вероятности нахождения электрона на месте расположения ядра не равна нулю. В  $n$ -легированных полупроводниках анизотропное взаимодействие мало и роль играет только изотропное сверхтонкое взаимодействие, которое называют контактным взаимодействием Ферми.

Через контактное сверхтонкое взаимодействие с локализованными на донорных примесях электронами происходит поляризация (и релаксация) ядерных спинов в  $n$ -легированных полупроводниках. Так, при освещении образца циркулярно-поляризованным светом, фотоны передают свой угловой момент электронам. При этом, благодаря спин-орбитальному взаимодействию, электронные спины поляризуются. Поляризованные по спину электроны, локализованные на донорных примесях, взаимодействуют с ядерными спинами через контактное взаимодействие Ферми [12, 14]:

$$\hat{H}_{hf} = \frac{2}{3} \mu_0 g_0 \mu_b \gamma_N \hbar I S |\Psi(0)|^2, \quad (1.7)$$

где  $I$  – спин ядра,  $S$  – спин электрона,  $\mu_b$  – магнетон Бора,  $g_0$  –  $g$ -фактор свободного электрона,  $\gamma_N$  – гиромагнитное отношения ядра,  $|\Psi(0)|^2$  – квадрат модуля волновой функции электрона на месте расположения ядра.

Оценки показывают, что в  $n$ -GaAs с одним электроном, локализованным на донорной примеси, посредством контактного сверхтонкого взаимодействия взаимодействуют около  $10^5$



ядерных спинов, расположенных в области локализации электрона. Такое взаимодействие сопровождается взаимными (flip-flop) переворотами электронного и ядерных спинов, что приводит к накоплению ядерной спиновой поляризации. Ненулевая средняя поляризация ядер  $\langle I \rangle$  приводит к появлению эффективного ядерного магнитного поля, действующего на электронный спин (поле Оверхаузера):

$$B_N = \sum_i B_{i\_max} \langle I_i \rangle / I_i, \quad (1.8)$$

где сумма происходит по всем изотопам.  $B_{i\_max}$  – поле Оверхаузера для  $i$ -го изотопа при стопроцентной поляризации ядер. Так, в случае кристалла GaAs,  $B_{i\_max} ({}^{71}\text{Ga}) = -7.8$  кГц,  $B_{i\_max} ({}^{69}\text{Ga}) = -9.1$  кГц,  $B_{i\_max} ({}^{75}\text{As}) = -18.4$  кГц [14].

Такой способ поляризации ядерных спинов лежит в основе метода оптического охлаждения во внешнем продольном магнитном поле. На практике в объемном  $n$ -GaAs с помощью оптического охлаждения удастся получить ядерную спиновую поляризацию порядка 5%. Но для низкоразмерных структур возможно достичь около 70% ядерной поляризации благодаря сильной локализации электронов [15-17].

Аналогично, ненулевая поляризация электронных спинов создает эффективное магнитное поле (поле Найта), действующее на ядерные спины [12]:

$$B_e = b_{e,\alpha}(r)S = b_{e,\alpha}(0)S \exp\left(-\frac{2r}{a_b}\right), \quad (1.9)$$

где  $b_{e,i}(0)$  – величина поля Найта на ядре типа  $i$ ,  $r$  – расстояние от электрона до ядра,  $a_b$  – Боровский радиус электрона. Для изотопов кристалла GaAs величина  $b_{e,i}(0)$  принимает следующие значения [12]:  $b_e^{75\text{As}}(0) = -220$  Гс,  $b_e^{69\text{Ga}}(0) = b_e^{71\text{Ga}}(0) = -130$  Гс.

Средний равновесный ядерный спин  $\langle I \rangle$ , созданный в результате поляризации ядер оптически ориентированными электронами во внешнем магнитном поле  $B_z$ , направлен вдоль этого поля. Ядерное поле, связанное со средним ядерным спином (формула (1.8)), имеет также направление вдоль поля  $B_z$  (рисунок 2). Поле Найта  $B_e$  имеет направление, противоположное направлению среднего электронного спина (формула (1.9)).

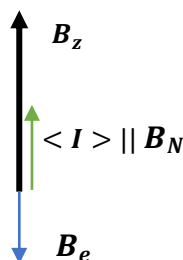


Рисунок 2 – Взаимные направления внешнего магнитного поля  $B_z$  (черная стрелка), поля Оверхаузера  $B_N$ , среднего ядерного спина  $\langle I \rangle$  (зеленая стрелка) и поля Найта  $B_e$  (синяя стрелка).

### 1.2.4 Спиновая диффузия

Благодаря контактному сверхтонкому взаимодействию поляризуются и релаксируют только те ядерные спины, которые находятся непосредственно в области локализации электрона на доноре. Характерные времена поляризации и релаксации таких ядер в случае мелкого донора в кристалле *n*-GaAs составляют примерно  $T_{1e} \sim 0.1$  с [2]. В работе Daniel Paget 1982 года [18] экспериментально доказан тот факт, что ядра, находящиеся за пределами Боровского радиуса электрона, локализованного на доноре, поляризуются и релаксируют за счет спиновой диффузии, которая осуществляется посредством диполь-дипольного взаимодействия. Эксперименты были поставлены на объемном образце *n*-GaAs с концентрацией доноров  $n_d = 10^{14}$  см<sup>-3</sup> при температуре решетки  $T = 1.7$  К с помощью оптически детектируемого ядерного магнитного резонанса. Использование кристалла с минимальным количеством донорной примеси и охлажденного до гелиевых температур позволило авторам экспериментально изучать отдельно спиновую релаксацию ядер за счет спиновой диффузии и отдельно за счет непосредственного взаимодействия ядерных спинов с электроном, локализованным на доноре. Так, в оптических экспериментах, если поляризовать ядерные спины, а затем выключить накачку, то вначале, за время  $T_{1e}$ , исчезает поляризация ядерных спинов, находящихся в пределах боровского радиуса локализованного электрона, а затем в сторону донора релаксируют далекие ядерные спины. Процесс спиновой диффузии характеризуется коэффициентом диффузии  $D = 10^{-13} \frac{\text{см}^2}{\text{с}}$ , диффузионным радиусом  $\delta = 140$  Å [18] и длится порядка сотен секунд в зависимости от концентрации донорных примесей.

В работе [7], выполненной примерно в то же время, что и работа D. Paget, на примере объемного кристалла  $n$ -GaAs с помощью метода оптической ориентации была показана быстрая поляризация ядер (за времена  $T_{1e} \leq 10^{-4} c$ ), расположенных вблизи донора. Эта поляризация перемещается от донора в пределах диффузионного радиуса, формируя фронт ядерной поляризации, что также доказывает существование спиновой диффузии.

### 1.2.5 Основные принципы ядерного магнитного резонанса в твердом теле. Зеемановское взаимодействие

Первое успешное детектирование сигнала ядерного магнитного резонанса (ЯМР) на протонах было сделано в 1945 г. Ф. Блохом [19], а также, независимо от него, Э. Парселлом и Р. Паундом на атомах водорода в воде и твердом парафине [20]. Эксперименты по ЯМР в твердом теле были успешно проведены в работе [21]. На сегодняшний день ЯМР является одним из основных методов определения строения и свойств веществ. Довольно долго не удавалось получить сигнал ЯМР в твердом теле, т.к. сигнал был уширен из-за сильного диполь-дипольного взаимодействия между ядерными спинами. Из-за этого не было возможным извлечь из сигнала ЯМР тонкие эффекты, например электронное экранирование. Однако позже был предложен метод импульсного ЯМР, который позволил значительно сузить линии.

Для наблюдения сигнала ЯМР необходимо поместить ядра, обладающие магнитным моментом (такие ядра имеют ненулевой спин), в постоянное магнитное поле и затем приложить переменное магнитное поле на определенной частоте. Резонансное поглощение будет наблюдаться на частоте ларморовской прецессии ядерного изотопа в данном магнитном поле.

В постоянном магнитном поле  $\vec{B} = (0, 0, B_z)$  магнитный момент ядра обладает Зеемановской энергией, которой соответствует Гамильтониан:

$$\hat{H}_z = -\gamma \hbar \hat{I}_z B_z, \quad (1.10)$$

где  $\gamma$  – гиромагнитное отношение ядерного спина,  $\hat{I}_z$  – оператор  $z$ -проекции ядерного спина на направление магнитного поля  $B_z$ ,  $\hbar$  - постоянная Планка. Как было сказано выше, энергия ядерного спина во внешнем магнитном поле может принимать только дискретные значения. Так, вырожденный уровень энергии ядерного спина  $I = 3/2$  во внешнем магнитном поле  $\vec{B} =$

$(0, 0, B_z)$  расщепляется на четыре состояния, каждое из которых соответствует разным величинам проекций спина на направление внешнего магнитного поля:  $m = \pm \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2}$  (рисунок 3). Разность энергий между соседними уровнями энергии ядерного спина ( $\Delta m = \pm 1$ ) равна:

$$\Delta E = \hbar \gamma_i B_z, \quad (1.11)$$

где  $\gamma_i$  – гиромагнитное отношение  $i$ -го ядерного изотопа.

Теперь, если к ядерной спиновой системе, находящейся в постоянном магнитном поле, приложить переменное магнитное поле на резонансной частоте  $\omega_0$ :

$$\hbar \omega_0 = \Delta E, \quad (1.12)$$

то это вызовет переходы между соседними уровнями энергий ядерных спинов с изменением проекции на  $\Delta m = \pm 1$ . В этом состоит суть ЯМР.

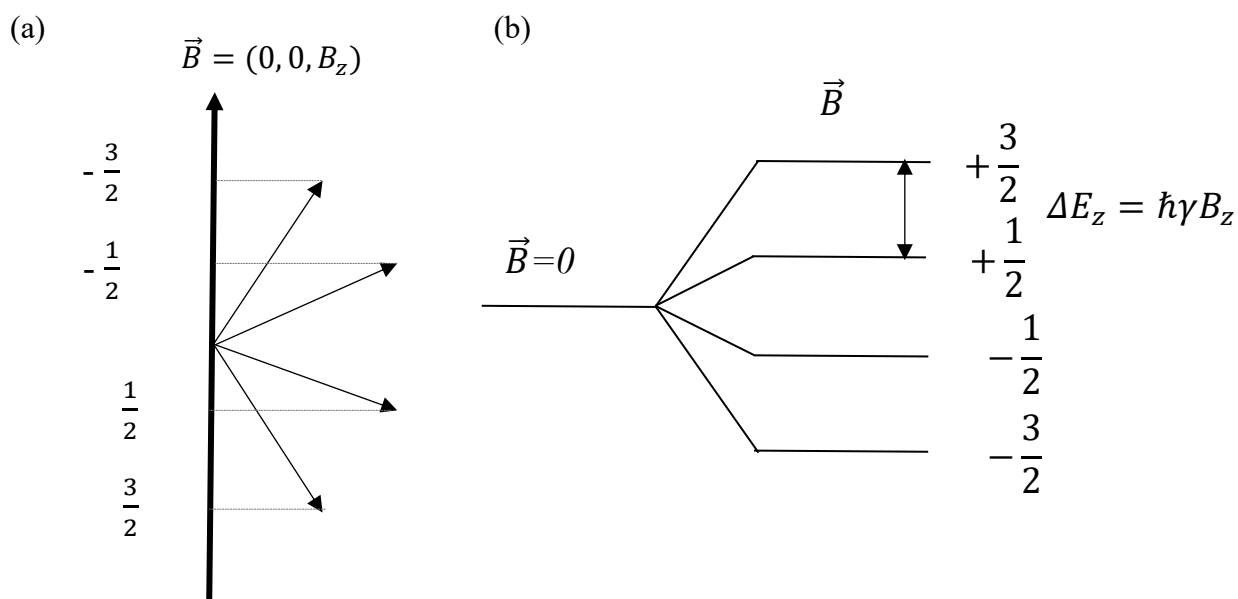


Рисунок 3 – (а) Схематическое изображение четырех проекций ядерного спина ( $m = -3/2, -1/2, 1/2$  и  $3/2$ ) на направление внешнего магнитного поля  $\vec{B} = (0, 0, B_z)$ . (б) Расщепление вырожденного уровня энергии на четыре уровня с величинами проекций ядерного спина ( $m = -3/2, -1/2, 1/2$  и  $3/2$ ) во внешнем магнитном поле  $\vec{B}$ .

Гамильтониан взаимодействия ядерного спина, обладающего магнитным моментом  $\hat{\mu}$ , с переменным магнитным полем  $B_1$  имеет вид [10]:

$$\hat{H}_1 = -\hat{\mu}\hat{B}_1 \cos(\omega t) \equiv \hat{H}_{01} \cos(\omega t), \quad (1.13)$$

$$\hat{H}_{01} = -\gamma h(\hat{I}_x B_{1,x} + \hat{I}_y B_{1,y} + \hat{I}_z B_{1,z}). \quad (1.14)$$

Операторы  $\hat{I}_x$  и  $\hat{I}_y$  переводят ядерный спин из состояния со значением магнитного квантового числа  $m$  в состояния со значением  $(m \pm 1)$ . Поэтому, чтобы наблюдать переходы между Зеемановскими уровнями энергии, нужно прикладывать переменное магнитное поле в плоскости  $(x, y)$ . При этом, если переход происходит с нижнего уровня на верхний, то он будет сопровождаться поглощением энергии переменного поля, а если с верхнего уровня на нижний, то будет происходить выделение энергии. Причем эти переходы равновероятны. Но из-за небольшого избытка спинов на нижнем уровне, число переходов с нижнего уровня на верхний в единицу времени будет преобладать, что приведет к поглощению энергии переменного поля и постепенному выравниванию населенностей ядерных уровней энергии.

Избыток спинов на нижнем уровне связан со статистическими свойствами ядерной спиновой системы. Так, в условиях термодинамического равновесия, населенность  $i$ -го уровня убывает с увеличением его энергии  $E_i$  по закону:

$$n_i = A \exp\left(-\frac{E_i}{kT}\right), \quad (1.15)$$

где  $A$  – нормировочный коэффициент,  $k$  – постоянная Больцмана,  $T$  – температура системы.

Во внешнем магнитном поле возникает макроскопическая намагниченность ядерных спинов  $M$ . Т. е. количество спинов, ориентированных вдоль направления внешнего поля, больше, чем ориентированных против поля (рисунок 4).

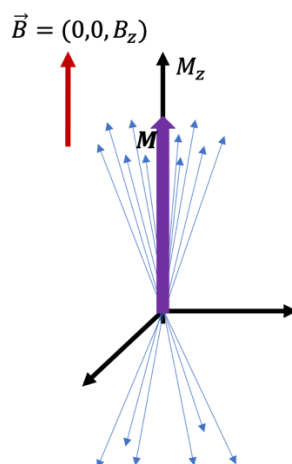


Рисунок 4 – Изображение макроскопической намагниченности  $M$  (фиолетовая стрелка) для случая  $I = 1/2$ .

Красная стрелка обозначает направление внешнего магнитного поля  $\vec{B}$ . Синие стрелки «вверх» обозначают количество ядерных спинов с проекцией на ось  $Z$   $m = +1/2$ , синие стрелки «вниз» обозначают количество ядерных спинов с проекцией  $m = -\frac{1}{2}$ . Поскольку спинов с  $m = +1/2$  больше, чем спинов с  $m = -1/2$ , то суммарная макроскопическая намагниченность определяется ядерными спинами с  $m = +1/2$  (фиолетовая стрелка) и имеет направление вдоль внешнего поля.

Макроскопическая намагниченность в равновесном состоянии направлена вдоль внешнего магнитного поля (рисунок 4):

$$M = \chi B_z, \quad (1.16)$$

где  $\chi$  - статическая восприимчивость ядерных спинов.

Но даже в сильных магнитных полях порядка сотен кГц при высоких температурах ( $T > 1\text{ K}$ ) величина статической намагниченности мала, т. е. населенности энергетических уровней можно считать примерно одинаковыми (ЯСС имеет почти нулевую поляризацию). Чтобы получить значительную статическую намагниченность, нужно охладить ядерную спиновую систему до температур порядка микрокельвин. Это возможно сделать с помощью оптического охлаждения ядерных спинов в постоянном продольном магнитном поле. Такое охлаждение возможно благодаря сверхтонкому взаимодействию ядерных спинов и спинов электронов, локализованных на донорных центрах. Если к охлажденной таким образом ЯСС приложить переменное магнитное поле определенной частоты, то ядерные спины будут его поглощать. В этом состоит суть метода оптически-детектируемого ядерного магнитного резонанса (ОДЯМР). Переменное магнитное поле уменьшает величину статической намагниченности, что сопровождается изменением энергии ядерных спинов. Поскольку полная энергия ядерной спиновой системы не может измениться, то существует резервуар, с которым ядерные спины

обмениваются энергией. Таким резервуаром служит кристаллическая решетка (колебания атомов). Так, время, в течение которого ядерные спины обмениваются энергией с решеткой и вследствие чего вновь возвращаются в термодинамическое равновесие, характеризующееся продольной компонентой статической намагниченностью, называется временем продольной или спин-решеточной релаксации и обозначается как  $T_1$ .

### 1.2.6 Квадрупольное взаимодействие

Ядерным квадрупольным взаимодействием называется взаимодействие электрического квадрупольного момента ядра  $Q_{jk}$  с градиентом электрических полей (ГЭП)  $\frac{\partial^2 V}{\partial x_j \partial x_k}$  на нем. В полупроводниках, которые содержат ядерные изотопы со спинами  $I \geq 1$ , возможно возникновение квадрупольного взаимодействия (появление ненулевых компонент тензора ГЭП). Общий вид Гамильтониана квадрупольного взаимодействия выражается через компоненты тензора ГЭП:

$$\hat{H}_Q = \sum_{j,k} \left( \frac{\partial^2 V}{\partial x_j \partial x_k} \right) Q_{jk}, \quad (1.17)$$

где  $V$  – электростатический потенциал вблизи ядра, индексы  $j$  и  $k$  могут принимать значения одной из трех декартовых координат ( $x, y, z$ ),  $Q_{jk} = \frac{eQ}{6I(2I-1)} \left\{ \frac{3}{2} (I_j I_k + I_k I_j) - \delta_{jk} I(I+1) \right\}$  – квадрупольный момент ядра.

Природа электростатического потенциала может быть различной. Это могут быть как внешние воздействия на образец (деформация, приложение электрического поля), так и внутренние характеристики образца (напряжение в эпитаксиальной структуре из-за рассогласования постоянных решеток, встроенное электрическое поле). В зависимости от природы электростатического потенциала и направления главной оси тензора ГЭП, квадрупольная энергия ядерных спинов будет различной.

В случае кубической симметрии кристалла (какую имеет изучаемый в данной диссертации кристалл GaAs) при отсутствии внешних воздействий все компоненты тензора ГЭП равны нулю. Однако, как сказано выше, деформации, приложенные вдоль различных осей кристалла, либо

электрическое поле (внешнее или встроенное) приводят к появлению ненулевых компонент тензора ГЭП.

Обычно для удобства переходят в оси (X, Y, Z), в которых тензор ГЭП является диагональным и имеет компоненты  $U_{ZZ}$ ,  $U_{XX}$  и  $U_{YY}$ . Тогда Гамильтониан квадрупольного взаимодействия можно записать:

$$\hat{H}_Q = \frac{eQU_{ZZ}}{4I(2I-1)} \left\{ 3\hat{I}_Z^2 - I(I+1) + \frac{U_{XX}-U_{YY}}{2U_{ZZ}} (\hat{I}_+^2 + \hat{I}_-^2) \right\}, \quad (1.18)$$

где  $\hat{I}_\pm = \hat{I}_x \pm i\hat{I}_y$ ,  $Q$  – константа квадрупольного взаимодействия,  $e$  – заряд электрона. Осью Z будем считать ось, вдоль которой выращена структура.

Каждый ядерный изотоп имеет свою константу квадрупольного взаимодействия. Для изотопов кристалла GaAs константы квадрупольного взаимодействия приведены в таблице 2.

Таблица 2 – Значения констант квадрупольного взаимодействия для изотопов кристалла GaAs [22].

Изотопы кристалла GaAs	$Q, 10^{-30} \text{М}^2$
$^{71}\text{Ga}$	10.7
$^{69}\text{Ga}$	17.1
$^{75}\text{As}$	31.4

Ненулевые компоненты тензора ГЭП можно выразить через наличие упругой деформации, которая описывается тензором второго ранга  $\varepsilon_{lm}$ , и присутствием электрического поля  $F$  в случае пьезоэлектрического кристалла следующим образом:

$$V_{jk} = S_{jklm}\varepsilon_{lm} + R_{ijk}F_k, \quad (1.19)$$

где  $S_{jklm}$  – градиенто-эластический тензор четвертого ранга,  $R_{ijk}$  – тензор третьего ранга, связывающий тензор ГЭП с электрическим полем. Суммирование производится по повторяющимся индексам.

Тензор упругой деформации  $\varepsilon_{lm}$  выглядит следующим образом:

$$\varepsilon_{lm} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{yx} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} & \varepsilon_{zy} & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix}. \quad (1.20)$$



В кубическом кристалле (которым является, в частности, GaAs) вид тензора  $\varepsilon_{lm}$  упрощается, т. к.  $\varepsilon_{xy} = \varepsilon_{yx}$ ,  $\varepsilon_{xz} = \varepsilon_{zx}$ ,  $\varepsilon_{yz} = \varepsilon_{zy}$ .

Градиенто-эластический тензор 4-го ранга  $S_{jklm}$  для кристаллов, которые имеют решетку типа цинковой обманки, в обозначениях Фохта имеет вид:

$$S_{jklm} = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{12} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{11} & S_{12} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{12} & S_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} \end{pmatrix}, \quad (1.21)$$

где  $S_{11} = S_{xxxx} = S_{yyyy} = S_{zzzz}$ ,  $S_{12} = -\frac{S_{11}}{2}$  – диагональные компоненты тензора  $S_{jklm}$ ,  $S_{44} = S_{yzyz} = S_{xyxy} = S_{xzxz}$  – недиагональные компоненты тензора  $S_{jklm}$ .

Электрическое поле  $F$ , которое может вызвать квадрупольное взаимодействие в пьезоэлектрических кристаллах, имеет вид вектора-столбца:

$$F = \begin{pmatrix} F_x \\ F_y \\ F_z \end{pmatrix}. \quad (1.22)$$

Можно ввести  $C_{jklm}$  – тензор упругих модулей (или тензор жесткости), где  $j, k, l, m = (x, y, z)$ . Тогда тензор механических напряжений  $\sigma_{lm}$  выражается через тензор жесткости и тензор упругой деформации:

$$\sigma_{lm} = \sum_{jk} C_{jklm} \varepsilon_{jk}. \quad (1.23)$$

Для кристаллов со структурой цинковой обманки тензор  $C_{jklm}$  имеет следующие ненулевые компоненты:  $C_{11} = C_{xxxx} = C_{yyyy} = C_{zzzz}$  – диагональные компоненты тензора  $C_{jklm}$ ,  $C_{12} = C_{xxyy} = C_{xxzz} = C_{yyzz} = C_{zzxx} = C_{yuyx} = C_{zzyy}$  и  $C_{44} = C_{xyxy} = C_{xzxz} = C_{yzyz}$  – недиагональные компоненты тензора  $C_{jklm}$ .

Величины ненулевых компонент данных тензоров для кристалла GaAs приведены в таблице 3.

Таблица 3 – Величины компонент тензоров для изотопов GaAs, которые описывают различные виды деформаций, приводящие к появлению ГЭП. \*В таблице приведены величины компоненты  $R_{14}$  из работы [24], но пересчитаны с учетом более новых квадрупольных констант из работы [22].

Компоненты тензоров \ Изотоп	$^{71}\text{Ga}$	$^{69}\text{Ga}$	$^{75}\text{As}$
$S_{11} * 10^{21}, \frac{\text{V}}{\text{m}^2}$ [23]	-22	-22	24.2
$S_{44} * 10^{21}, \frac{\text{V}}{\text{m}^2}$ [23]	9	9	48
$R_{14} * 10^{10}, \text{cm}^{-1}$ [24]*	2.1	2	1.9
$C_{11} * 10^{11}, \frac{\text{H}}{\text{m}^2}$ [25]	1.2	1.2	1.2
$C_{12} * 10^{11}, \frac{\text{H}}{\text{m}^2}$ [25]	0.54	0.54	0.54
$C_{44} * 10^{11}, \frac{\text{H}}{\text{m}^2}$ [25]	0.62	0.62	0.62

Через данные тензора можно записать любой вид деформации, который приводит к квадрупольному вкладу в энергию ядерных спинов.

Стоит отметить, что квадрупольное взаимодействие в образце приводит к увеличению локального поля [26], а также к сдвигу Зеемановских уровней энергии и, как следствие, к появлению квадрупольных спутников в спектрах ядерного квадрупольного резонанса (рисунок 5).

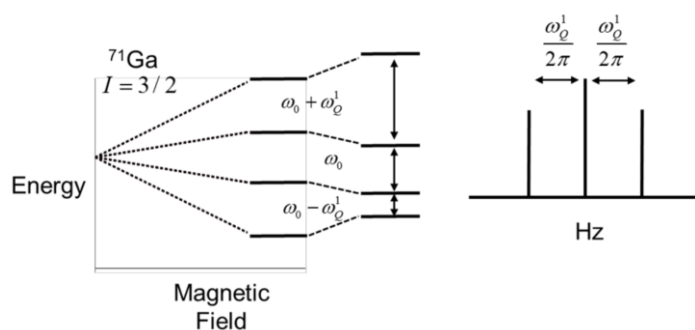


Рисунок 5 – Схематическое изображение сдвига ядерных спиновых уровней энергии во внешнем магнитном поле из-за наличия квадрупольного взаимодействия. Частота центрального перехода остается без изменений, а частоты соседних переходов сдвигаются на величину  $\pm \omega_Q'$ , которая пропорциональна величине квадрупольного взаимодействия в образце.

### 1.3 Процессы релаксации ядерных спинов в объёмных кристаллах *n*-GaAs

Если ЯСС вывести из равновесия, то обратно к равновесному состоянию она будет приходить за счет процессов релаксации. Релаксационные процессы приводят ядерные спины в равновесие внутри самой ЯСС, а также в равновесие с окружением. Эти процессы протекают за разное время и зависят от многих факторов.

Глубокое охлаждение ядерных спинов ограничивается, как было сказано выше, величиной локального поля, а также эффективностью накачки и процессами релаксации ядерных спинов в течение этапа адиабатического размагничивания. Поэтому важно знать и понимать механизмы, по которым, в частности, происходит ядерная спиновая релаксация в изучаемом кристалле, а также знать ее характерные времена.

В начале первой главы уже были введены два времени релаксации ядерных спинов: время спин-спиновой релаксации  $T_2$  и время спин-решеточной релаксации  $T_1$ . В данном разделе они будут рассмотрены подробнее.

#### 1.3.1 Спин-спиновая релаксация

Самый быстрый процесс релаксации происходит внутри ЯСС. Он называется спин-спиновой релаксацией и обусловлен диполь-дипольным взаимодействием между ядерными спинами. В нулевом магнитном поле спин-спиновая релаксация характеризуется временем  $T_2 \sim 10^{-4}$  с для GaAs [14]. За это время релаксирует неравновесный угловой момент ядерных спинов и устанавливается Больцмановское распределение по энергетическим уровням в локальных полях, которое характеризуется некоторой ядерной спиновой температурой. Если поместить ЯСС во внешнее магнитное поле, то ядерные спины также будут распределяться согласно статистике Больцмана, но уже между Зеемановскими уровнями энергии. В данном случае время спин-спиновой релаксации будет расти с увеличением магнитного поля, т. е. ядерные спины будут дольше приходить к термодинамическому равновесию. При этом, во внешнем магнитном поле, намного большем локальных полей, на масштабе времени  $T_2$

релаксирует поперечная компонента среднего ядерного спина, а продольная компонента сохраняется. Также, если ЯСС была поляризована с помощью оптического охлаждения во внешнем магнитном поле, то после этапа адиабатического размагничивания (после выключения магнитного поля до нуля), ядерная спиновая поляризация исчезает за  $T_2 \sim 10^{-4}$  с, но при этом сохраняется достигнутая в результате оптического охлаждения ядерная спиновая температура, которая далее выравнивается с температурой решетки за времена спин-решеточной релаксации.

### 1.3.2 Спин-решеточная релаксация

За время спин-решеточной релаксации  $T_1$  ЯСС обменивается энергией с окружением. Времена такого процесса релаксации зависят от многих факторов (тип легирования, концентрация примесей, температура решетки, величина внешнего поля, наличие или отсутствие накачки и т.д.) и могут варьироваться от нескольких секунд (что характерно для кристаллов *p*-типа) до нескольких часов. Остановимся более подробно на особенностях спин-решеточной релаксации в объемных кристаллах *n*-GaAs.

Для объемных полупроводников в диэлектрической фазе (с концентрацией доноров  $\sim 10^{15}$  см<sup>-3</sup>) основным механизмом спин-решеточной релаксации ядерных спинов является сверхтонкое взаимодействие ядер с электронами на донорах. В работе [7] для объемного кристалла *n*-GaAs было обнаружено формирование температурного фронта ядерной поляризации, наличие которого возможно при условии, что ядерные спины вблизи донора вначале оптически поляризуются, а затем отогреваются (релаксируют) за счет сверхтонкого взаимодействия с локализованным на доноре электроном. В данной работе для глубокого охлаждения ядерных спинов использовался метод оптического охлаждения с дальнейшим адиабатическим размагничиванием. В работе [18] методом оптически детектируемого ЯМР (ОДЯМР) было также показано, что существуют две компоненты спин-решеточной релаксации: быстрая компонента, которая определяется релаксацией ядер, расположенных в пределах волновой функции электрона на доноре, за счёт сверхтонкого взаимодействия с этим электроном, и медленная компонента, которую формируют ядерные спины, находящиеся за пределами волновой функции электрона (они теряют свою поляризацию за счет спиновой диффузии к ядрам, находящимся под донором). При этом в работе [18] экспериментально доказано, эти две компоненты спин-решеточной релаксации можно изучать по отдельности. Таким образом

работы [7] и [18] показывают, что в полупроводниках в диэлектрической фазе энергетическая релаксация ядерных спинов обусловлена их сверхтонким взаимодействием с локализованным на доноре электроном.

В работе [27] была развита теория спин-решеточной релаксации ядерных спинов в отсутствие накачки в изолирующих кристаллах  $n$ -GaAs. Авторы изучали скорость релаксации в зависимости от величины внешнего магнитного поля методом поляризованной ФЛ с темновыми промежутками, в течение которых прикладывалось статическое магнитное поле. С помощью таких экспериментов авторы получили результат, который нельзя объяснить с помощью ранее предложенного механизма отогрева за счет спиновой диффузии ядер к донору: скорость отогрева ядерных спинов резко падет с ростом внешнего магнитного поля (рисунок 6).

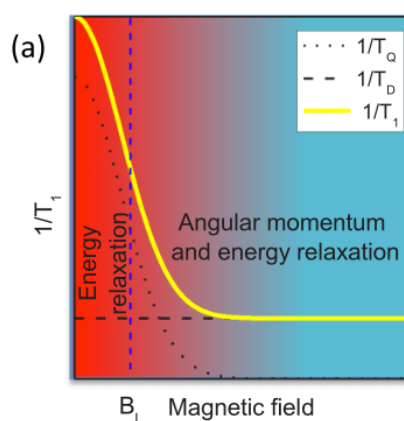


Рисунок 6 – Зависимость двух вкладов в скорость спин-решеточной релаксации от магнитного поля (желтая линия): релаксация за счет сверхтонкого взаимодействия и спиновой диффузии к донору со скоростью  $1/T_D$  (горизонтальная пунктирная линия), и квадрупольная релаксация со скоростью  $1/T_Q$  [27].

Такая нетривиальная зависимость скорости релаксации объясняется наличием квадрупольного взаимодействия ядерных спинов с флуктуирующими электрическими полями, которые возникают из-за прыжков электронов с донора на донор при низкой температуре решетки, либо из-за прыжков электронов с доноров в зону проводимости при высоких температурах в отсутствие накачки. Так, флуктуации электрических полей вызывают дополнительный поток энергии в ЯСС  $F_Q$ . При этом данный механизм релаксации исчезает с ростом магнитного поля, т. к. скорость квадрупольной релаксации  $\frac{1}{T_Q} = \frac{F_Q}{C_N \beta}$ ,  $F_Q$  не зависит от поля, а теплоёмкость ЯСС  $C_N$  пропорциональна квадрату поля:  $C_N \sim B^2$ .

В работе [28] также изучалась спин-решеточная релаксация ядерных спинов, но уже в широком диапазоне концентраций донорной примеси в кристаллах  $n$ -GaAs. Для этого авторы

использовали три независимых метода определения зависимости скорости спин-решеточной релаксации от магнитного поля: метод поляризованной ФЛ с темновыми промежутками для объёмных образцов (как в работе [27]), и методы спектроскопии спинового шума и Фарадеевского вращения для образцов с микрорезонаторами. Все три метода позволяют изучать релаксацию ядер в отсутствии фоторожденных носителей заряда. Оказалось, что спад скорости релаксации с ростом магнитного поля характерен для всего изучаемого диапазона концентраций донорных примесей (рисунок 7). В слабых полях  $B < B_L$ , для концентраций доноров  $n_d \leq 2 * 10^{16} \text{см}^{-3}$  основной вклад в скорость релаксации дает квадрупольное взаимодействие ядерных спинов с флуктуирующими электрическими полями, описанное в работе [27]. Для металлических образцов ( $n_d > 2 * 10^{16} \text{см}^{-3}$ ) природа слабых флуктуаций, которые ускоряют релаксацию ядерных спинов, пока неизвестна.

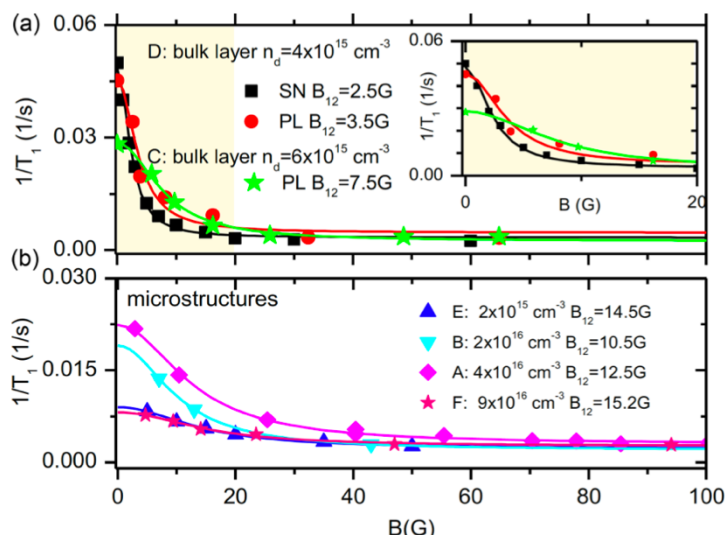


Рисунок 7 – Зависимость скоростей спин-решеточной релаксации от магнитного поля для объёмных образцов, полученная с помощью методов спинового шума (SN) и поляризованной ФЛ (PL) (a), и образцов в микрорезонаторе с различными концентрациями донорной примеси (b). Вставка показывает поведение скоростей релаксации в магнитных полях до 20 Гс [28].

В сильных магнитных полях скорость квадрупольной релаксации  $\frac{1}{T_Q}$  не играет роли ни для каких концентраций доноров. Для изолирующих образцов ( $n_d < 5 * 10^{15} \text{см}^{-3}$ ) релаксация происходит за счет сверхтонкого взаимодействия ядер с электронами и за счет спиновой диффузии. Для концентраций  $5 * 10^{15} \text{см}^{-3} < n_d < 10^{16} \text{см}^{-3}$  скорость релаксации меньше, чем предсказывает диффузная модель, и причина этого пока не ясна. Для  $n_d > 10^{16} \text{см}^{-3}$  спиновая

релаксация ограничивается диффузией ядер в сторону донорных пар при низкой температуре, а при температурах  $T > 5K$  релаксация ядерных спинов определяется механизмом Корринга.

## 1.4 Методы поляризации ядерных спинов в полупроводниках

На сегодняшний день существует ряд методов, которые позволяют изучать свойства веществ, имеющих ненулевой ядерный спин в твердом теле. Среди них можно выделить спектроскопию ядерного магнитного резонанса (ЯМР), которая имеет широкий прикладной характер и метод оптической ориентации ядерных спинов, позволяющий изучать электрон-ядерные эффекты, связанные с намагниченностью ядер.

### 1.4.1 Эффект Оверхаузера

Эффект Оверхаузера – это способ поляризации ядерных спинов в металлах при насыщении переходов между уровнями энергии электронов в магнитном поле. В стационарном состоянии в присутствии внешнего магнитного поля выполняется условие [29]:

$$W_{m,m+1}N_m n_{\uparrow} = W_{m+1,m}N_{m+1}n_{\downarrow}, \quad (1.24)$$

где  $W_{m,m+1}$  - вероятность одновременного переворота спинов электрона и ядра,  $W_{m+1,m}$  - вероятность обратного процесса,  $N_m$  – населенность ядерного уровня с  $m$ -проекцией спина на направление магнитного поля,  $n_{\uparrow}$  и  $n_{\downarrow}$  - населенности электронных спиновых уровней с проекцией спина вдоль и против поля соответственно.

Для отношений вероятностей переходов из предыдущего уравнения имеем:

$$\frac{W_{m,m+1}}{W_{m+1,m}} = \frac{N_{m+1}n_{\downarrow}}{N_m n_{\uparrow}} = e^{\frac{\Delta E_N + \Delta E_e}{kT}}, \quad (1.25)$$

где  $\Delta E_N$  и  $\Delta E_e$  – Зеемановское расщепление ядерных и электронных спиновых уровней энергии.

Таким образом, в состоянии равновесия равновесная поляризация ядерных спинов  $\frac{N_{m+1}}{N_m} = e^{\frac{\Delta E_N}{kT}}$  близка к нулю. Но если приложить переменное магнитное поле на резонансной частоте электронных переходов, то это приведет к выравниванию населенностей электронных уровней:  $n_{\uparrow} = n_{\downarrow}$  и, т. к.  $\Delta E_e \gg \Delta E_N$  (из-за того, что электронный магнетон Бора в  $10^3$  раз больше, чем ядерный), то:

$$\frac{N_{m+1}}{N_m} = e^{\frac{\Delta E_N + \Delta E_e}{kT}}. \quad (1.26)$$

Т. е. можно получить ядерную спиновую поляризацию, значительно превышающую ее равновесное значение.

#### 1.4.2 Ядерный солид-эффект

Одним из способов динамической поляризации ядерных спинов в твердом является солид-эффект. В 1960-х годах А. Абрагам и его коллега У. Проктор экспериментально доказали солид-эффект в твердом теле на примере кристалла LiF. Также суть данного эффекта подробно описана в работе [13] на примере ядерных спинов  $^{19}\text{F}$  материала  $\text{CaF}_2$ . В этих экспериментах образец охлаждался до температуры  $T = 0.7$  К и помещался в постоянное магнитное поле  $B = 2.7$  Тл. В таких условиях ядерные спины имели почти нулевую поляризацию, а электронные спины за счет их большого магнитного момента были почти полностью поляризованными. Далее к образцу прикладывалось переменное магнитное поля на частоте равной разности Ларморовских частот электронного и ядерного спинов. Оно индуцирует flip-flop переходы. Так, один взаимный переворот электронного и ядерного спинов происходит за счет поглощения кванта энергии переменного магнитного поля  $h(\omega_e - \omega_N)$ , где  $\omega_e$  и  $\omega_N$  – частоты Ларморовой прецессии электронного и ядерного спинов соответственно. Электронный спин быстро теряет свое направление и возвращается в исходное состояние, при этом отдавая в решетку квант энергии  $h\omega_e$ , в то время как ядерный спин не успевает потерять свое новое направление из-за длинного



времени спин-решеточной релаксации. Этот процесс повторяется, и ядерная спиновая поляризация вблизи электрона накапливается.

Также особенностью данного метода динамической поляризации ядер является возможность реализации отрицательной спиновой температуры, когда ядра будут поляризованы против направления внешнего магнитного поля. Для этого образец облучается переменным магнитным полем с суммарной энергией  $\hbar(\omega_e + \omega_N)$ . Изначально направленные в одну сторону электронный и ядерный спины (вдоль внешнего поля) одновременно изменяют свое направление на противоположное. Затем, как и в первом случае, электронный спин быстро вернется в изначальное направление, а ядерная поляризация в итоге будет направлена против поля.

### **1.4.3 Поляризация ядерных спинов в полупроводниках методом оптического охлаждения**

Как было отмечено выше в разделе 1.1., ядерные спины можно поляризовать, поместив образец во внешнее магнитное поле. Однако достигнуть значительной ядерной спиновой поляризации таким методом довольно трудно: нужно прикладывать магнитные поля порядка нескольких Тесла, поскольку ядерные спины имеют слабую статическую восприимчивость. И даже в этом случае ядерная поляризация будет близка к нулю. Возможность достигнуть значительной поляризации ядерных спинов в объемных полупроводниках в слабых магнитных полях дает метод оптического охлаждения ядерных спинов, который возможен благодаря явлению оптической ориентации спинов. Термин оптическая ориентация относится к поляризации спинов электронов в проводящих материалах за счет их взаимодействия с циркулярно-поляризованным светом, при котором происходит передача углового момента от фотонов к электронам. Благодаря спин-орбитальному взаимодействию, электроны приобретают преимущественную ориентацию собственного момента движения относительно возбуждающего луча. Само явление оптической ориентации имеет богатую теоретическую и экспериментальную историю, которая начинается с первых опытов по деполяризации люминесценции паров металлов в магнитном поле (1924 г.). Позже этим опытам было дано теоретическое объяснение, а деполяризацию люминесценции в поперечном магнитном поле назвали в честь Вильгельма Ханле (эффект Ханле). Оптическая ориентация лежит в основе метода оптического охлаждения ядерных спинов через сверхтонкое взаимодействие ядер с оптически поляризованными электронами. Т. е. мы можем говорить об оптической ориентации ядерных спинов посредством

электронов. В диссертации ядерные спины поляризовались с помощью данного метода и такой процесс называется методом оптического охлаждения. Подробнее оптическое охлаждение ядерных спинов будет описано в главе 2 на примере оригинальных экспериментальных данных.

## 1.5 Ядерный магнитный порядок в полупроводниковых структурах

На сегодняшний день известно достаточно много явлений, связанных с упорядочением электронных и ядерных спинов в различных материалах. Одними из самых известных являются переходы веществ в ферромагнитное и антиферромагнитное состояния. Такие переходы объясняются наличием у электрона магнитного дипольного момента, который создает вокруг себя магнитное поле. Для проявления того или иного магнитного упорядочения необходимо, чтобы атомы вещества имели незаполненную электронную оболочку (т.е. чтобы часть электронов имела не скомпенсированные магнитные моменты). К таким материалам относятся, к примеру, 3d-металлы: Fe, Co и Ni, у которых 3d электронная оболочка заполнена не полностью. Также переходы в магнитный порядок возможны при определенных температурах кристаллических решеток. Так, в парамагнетике при температуре ниже температуры Кюри происходит спонтанная намагниченность и парамагнетик становится ферромагнетиком. Аналогично антиферромагнитное состояние образуется при температуре ниже температуры Нееля. Эти две температуры зависят от веществ и имеют достаточно высокие значения. К примеру, самую высокую температуру Кюри имеет кобальт ( $T_c = 1388 \text{ K}$ ).

Магнитный полярон в полумагнитных полупроводниках также является еще одним примером упорядоченного состояния электронных спинов. Например, образование магнитного полярона возможно в твердом растворе  $Cd_{1-x}Mn_xTe$ , где атомы Mn имеют только наполовину заполненную 3d-оболочку, а значит ненулевой магнитный момент (самый большой из всех атомов группы железа). Магнитный полярон образуется в два этапа [30]. Вначале свободный электрон локализуется на донорной примеси или случайном потенциале твердого раствора. Затем окружающие локализованный электрон магнитные моменты атомов Mn выстраиваются по направлению магнитного момента электрона (рисунок 8).

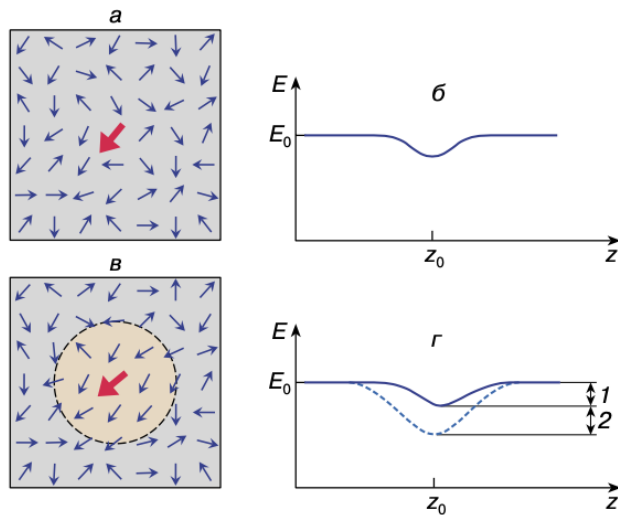


Рисунок 8 – Схема формирования магнитного полярона: (а) немагнитная локализация электрона в кристаллической решетке (синими стрелками обозначены моменты одиночных магнитных атомов, красной стрелкой обозначен магнитный момент электрона); (б) потенциальная яма, соответствующая немагнитной локализации; (в) та же область решетки после образования магнитного полярона;  $z$  – потенциальная яма, глубина которой определяется суммой энергий немагнитной (1) и магнитной (2) локализации [30].

Образование магнитного полярона ограничивается следующими условиями. Рост концентрации магнитных атомов Mn приводит к образованию антиферромагнитных пар вместо поляронов. Внешнее магнитное поле выстраивает магнитные моменты Mn вдоль своего направления, а не вдоль локализованного электрона. Также следует отметить то, что магнитный полярон образуется при достаточно высоких температурах решетки (около 4 К), т. к. такой температуры достаточно, чтобы тепловая энергия разориентации магнитных моментов  $kT$  была меньше обменного взаимодействия между локализованным электроном и магнитными атомами. Такая температура легко достигается в эксперименте. Существует также ряд работ, в которых экспериментально изучено образование магнитного полярона, к примеру, работы [31, 32].

Самых низких температур требует экспериментальное наблюдение упорядоченных состояний ядерных спинов, т. к. из-за малости ядерных магнитных моментов, энергия взаимодействия между ними мала и поэтому необходимы очень низкие температуры, чтобы подавить их тепловую энергию. Однако в 1970-х годах А. Абрагам и соавторы наблюдали антиферромагнитное упорядочение ядерных спинов изотопов  $^{19}F$  в диэлектрике  $CaF_2$ . А в 1980-х годах группа ученых из Финляндии и Дании экспериментально наблюдали ядерный спиновый порядок в металлах [13]. Так, согласно работе [13], в меди ядерные спины образуют антиферромагнитный порядок при спиновых температурах  $\theta_N(Cu) = 58$  нК, а для серебра

антиферромагнитная структура образуется при еще более низких температурах  $\theta_N(Ag) = 560$  пК.

В полупроводниковых структурах ядерный магнитный порядок может быть обусловлен диполь-дипольным взаимодействием между ядерными спинами. В таком случае необходимо охладить ядерные спины до температур порядка нанокельвин. Но таких низких спиновых температур методом оптического охлаждения с последующим адиабатическим размагничиванием пока достичь не удалось и на сегодняшний день для полупроводников ядерный магнитный порядок экспериментально не был обнаружен. Однако существует хорошо развитая теоретическая концепция ядерного спинового полярона, которая предсказывает существования поляронных состояний в *n*-легированных полупроводниках по аналогии с магнитными поляронами, которые, как было сказано выше, экспериментально уже были обнаружены. В следующих разделах будут приведены основы концепции ядерного спинового полярона. Также будет введено понятие ядерной спиновой температуры, которое необходимо для объяснения не только концепции ядерного спинового полярона, но также для понимания основных физических принципов методики спектроскопии отогрева ядерных спинов, которая будет представлена в оригинальной части диссертации.

## 1.6 Концепция ядерной спиновой температуры

Согласно работе [2], ядерная спиновая температура характеризует равновесное состояние системы взаимодействующих спинов, изолированных от решетки, которое устанавливается за время  $T_2$ :

$$T_2 \approx \frac{h}{\gamma_N B_L}. \quad (1.27)$$

На масштабе времен  $T_2 < t < T_1$ , где  $T_1$  – время спин-решеточной релаксации ядерных спинов, ЯСС можно считать изолированной от решетки и характеризовать собственной спиновой температурой  $\theta_N$ .

В отсутствии внешних магнитных полей, уровни энергии ЯСС расщеплены случайным локальным полем, созданным ядерными спинами друг на друге. Ядерные спины распределены по уровням энергии согласно статистике Больцмана:

$$\frac{N_m}{N_{m+1}} = e^{\frac{E_{dd}}{k_b \theta_N}}, \quad (1.28)$$

где  $E_{dd}$  – энергия диполь-дипольного взаимодействия.

В случае отсутствия внешних воздействий на ЯСС,  $\theta_N = \theta_L$ , где  $\theta_L$  – температура решетки. Добиться ядерной спиновой температуры, отличной от температуры решетки, возможно методом оптического охлаждения во внешнем продольном магнитном поле. Если затем убрать внешние воздействия на ЯСС (выключить накачку и магнитное поле), то  $\theta_N$  будет выравниваться с  $\theta_L$  за времена порядка  $T_1$ . В GaAs  $T_1$  может варьироваться от нескольких секунд до суток в зависимости от типа легирования, концентрации примеси и температуры решетки.

Охлаждение ЯСС методом оптического охлаждения в продольном магнитном поле  $B_z = 100$  Гс в течение пяти минут с последующим адиабатическим размагничиванием в локальное ядерное поле для объемного образца *n*-GaAs было сделано в работе [7]. Суть метода адиабатического размагничивания заключается в плавном выключении продольного магнитного поля после оптической накачки. Поле должно выключаться за время  $T_2 < t < T_1$ , чтобы на протяжении этого процесса в ЯСС успевало установиться термодинамическое равновесие. Таким методом авторам удалось достичь ядерной спиновой температуры  $\theta_N \sim 10^{-6}$  К.

Также стоит отметить возможность получать как положительные, так и отрицательные спиновые температуры. В эксперименте по оптическому охлаждению это регулируется взаимной ориентацией продольного магнитного поля  $B_z$  и направлением среднего электронного спина  $S$  согласно формуле:

$$\beta = \frac{4I}{\mu_N} \frac{(B \cdot S)}{B_L^2 \xi + B^2}, \quad (1.29)$$

где  $\beta$  – обратная спиновая температура,  $\vec{B} = (0, 0, B_z)$  – внешнее магнитное поле,  $2 < \xi < 3$  и зависит от степени корреляции электронов [2,11].

Во внешних магнитных полях  $B \gg B_L$  выделяют два энергетических резервуара в ЯСС: Зеемановский и спин-спиновый, каждый из которых характеризуется своей спиновой температурой и взаимодействует с решеткой в разных временных масштабах (рисунок 9 (b)). Между собой эти резервуары обмениваются энергией и приходят в термодинамическое равновесие в течение времени, которое называется временем смешивания  $\tau_m$ . В слабых

магнитных полях (рисунок 9 (а)) ЯСС имеет один резервуар энергии, который приходит в равновесие с решеткой за времена спин-решеточной релаксации  $T_1$ , о котором говорилось выше.

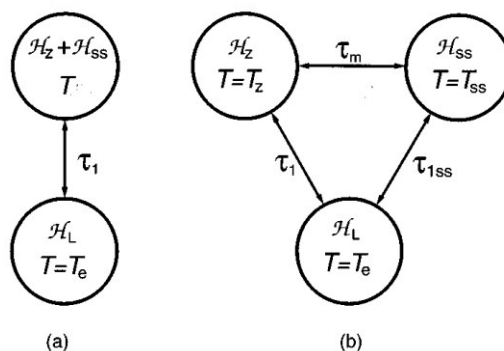


Рисунок 9 – Схематическая иллюстрация Зеемановского  $H_Z$ , спин-спинового  $H_{SS}$  и решеточного  $H_L$  резервуаров энергии для случаев слабых (а) и сильных (б) магнитных полей.

На рисунке 10 представлено равновесное распределение ядерных спинов  $I = \frac{1}{2}$  по Зеемановским уровням энергии для трех случаев: (а)  $\theta_Z > 0$ ,  $\theta_{SS} > 0$ , (б)  $\theta_Z < 0$ ,  $\theta_{SS} > 0$ , (с)  $\theta_Z < 0$ ,  $\theta_{SS} < 0$ , где  $\theta_Z$  – температура Зеемановского резервуара энергии,  $\theta_{SS}$  – температура спин-спинового резервуара энергии [13].

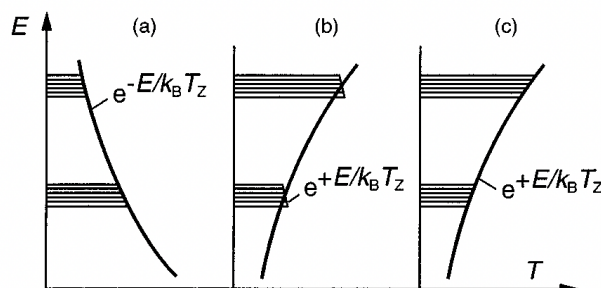


Рисунок 10 – Распределение ядерных спинов по Зеемановским (рассмотрен случай для ядерного спина  $I=1/2$ ) и по спин-спиновым уровням энергии для трех возможных комбинаций знаков спиновых температур: (а)  $\theta_Z > 0$ ,  $\theta_{SS} > 0$ , (б)  $\theta_Z < 0$ ,  $\theta_{SS} > 0$ , (с)  $\theta_Z < 0$ ,  $\theta_{SS} < 0$ . Расщепление Зеемановских уровней вызвано спин-спиновыми взаимодействиями.

В работе [26] проверялась возможность получения ядерной спиновой температуры отличной от температуры решетки в объемном образце *n*-GaAs, встроенного в микрорезонатор (МР) с помощью изучения ядерной спиновой поляризации в течение адиабатического

размагничивания. Согласно второму закону термодинамики, поведение ядерной поляризации при адиабатическом размагничивании (или перемангничивании) определяется спиновой температурой. Так, если ЯСС охладить в поле  $B_i$  до температуры  $\theta_{Ni}$ , а затем адиабатически медленно выключать внешнее поле, то спиновая температура примет значение:

$$\theta_N = \frac{\theta_{Ni} \sqrt{B_L^2 + B^2}}{B_i}. \quad (1.30)$$

А ядерная поляризация:

$$P_N = \frac{B}{3k_b \theta_N} \hbar \langle \gamma_N (I + 1) \rangle. \quad (1.31)$$

Усреднение происходит по изотопам.

Из формул (1.30) и (1.31) следует, что в полях  $B \geq B_L$  при уменьшении поля  $B$ , ядерная поляризация остается постоянной, а спиновая температура линейно понижается. При достижении нулевого поля в процессе адиабатического размагничивания ( $B = 0$ ),  $\theta_N$  будет иметь минимальное значение, которое ограничивается локальным полем, а ядерная поляризация будет равна нулю. Это является основным принципом охлаждения ЯСС через адиабатическое размагничивание.

В работе [26] состояние ЯСС в процессе адиабатического размагничивания детектировалось с помощью метода Фарадеевского вращения и с помощью измерения сигнала спинового шума локализованных электронов. Несмотря на наличие квадрупольных взаимодействий в образце с МР, авторам все же удалось охладить ЯСС и показать, что даже в присутствии квадрупольного взаимодействия устанавливается термодинамическое равновесие внутри ЯСС в процессе адиабатического размагничивания. Это происходит благодаря обмену энергией между Зеемановским и квадрупольным резервуарами энергий через диполь-дипольные flip-flop переходы. Минимальная спиновая температура для образцов с МР в данной работе получилась  $\theta_N = 6$  мкК.

Стоит сказать несколько слов про получение рекордно низких ядерных спиновых температур в металлах. Как было сказано в начале раздела 1.5 про ядерный магнитный порядок, 1980-х годах группы ученых из Дании и Финляндии занимались экспериментами по получению ядерного магнитного порядка в таких металлах как серебро, медь и родий [13]. Было необходимо охладить ядерные спины до сверхнизких спиновых температур. Для этого они использовали каскадный протокол адиабатического размагничивания. На рисунке 11 из работы [33]

представлены величины ядерных спиновых температур, которых удалось достичь в металлах в период с 1970-х по 2010 года.

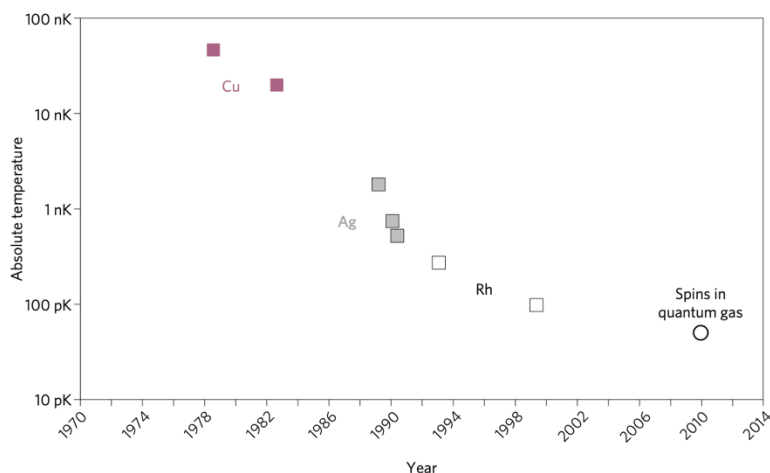


Рисунок 11 – Рекордно низкие ядерные спиновые температуры, полученные в металлах Cu, Ag и Rh в период с 1970-х по 2010 года [33].

### 1.7 Концепция ядерного спинового полярона

Как было сказано выше, образование ядерного спинового порядка за счет диполь-дипольного взаимодействия возможно при очень низких ядерных спиновых температурах порядка нанокельвин. Но в концепции ядерного спинового полярона образование ядерного магнитного порядка возможно не за счет диполь-дипольного взаимодействия между ядерными спинами, а за счет более сильного сверхтонкого взаимодействия между локализованным на донорной примеси электронным спином и ядерными спинами, находящимися в области локализации электрона (для GaAs число ядерных спинов, находящихся в этой области,  $N \sim 10^5$ ). Такое упорядоченное состояние ядерных спинов можно получить при более высоких спиновых температурах (порядка  $10^{-7}$  К), которых возможно достичь в экспериментах по оптическому охлаждению с дальнейшим адиабатическим размагничиванием.

Теория образования ядерного полярона при оптическом охлаждении была предложена И. А. Меркуловым в 1998 г. [4] в приближении теории среднего поля. С помощью метода оптического охлаждения с последующим адиабатическим размагничиванием ядерная спиновая температура понижается до значений, при которых происходит рост критических флуктуаций,



приводящий к формированию скоррелированного состояния локализованного электрона и окружающих его ядерных спинов. По оценкам И. А. Меркулова, такой переход возможен при ядерной спиновой температуре порядка  $10^{-7}$  К (при этом электроны имеют температуру решетки 4 К). Также важным критерием для роста критических флуктуаций и следующего за ним образования полярона является то, что произведение электронной и ядерной спиновых температур должно быть больше нуля (т. е. температуры должны иметь один знак).

В работе [5] 2017 года полярон И. А. Меркулова был рассмотрен для конечного числа ядерных спинов (рассмотрены случаи для  $N = 10^2, 10^4$  и  $10^6$ ). В случае конечного числа ядер, входящих в полярон, критические эффекты, возникающие при приближении к температуре формирования полярона, сглаживаются ядерными спиновыми флуктуациями. На рисунке 12 приведены расчеты для величины среднего спина ядерного полярона  $j_T$  в зависимости от температуры  $t = \frac{\theta_N}{\theta_c}$ , где  $\theta_c$  – температура, ниже которой формируется полярон. Черной линией на рисунке приведен расчет в рамках теории среднего поля, а цветными – для случаев конечного числа спинов в поляроне. Видно, что при учете конечного числа спинов, резкий переход в поляронное состояние сглажен флуктуациями. Этот факт можно использовать для экспериментального детектирования предполяронного состояния.

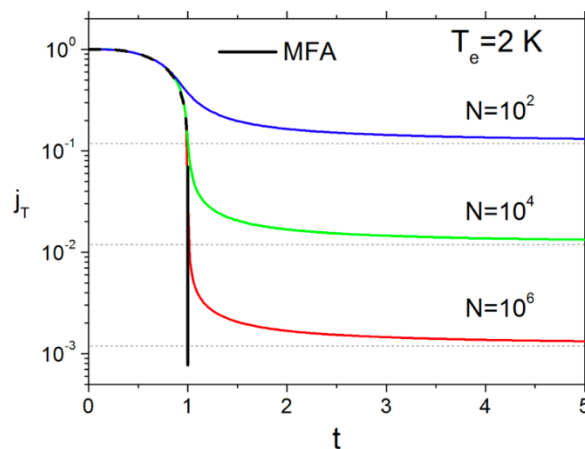


Рисунок 12 – Расчет среднего спина полярона  $j_T$  в зависимости от приведенной ядерной спиновой температуры  $t = \frac{\theta_N}{\theta_c}$  в рамках теории среднего поля (черная линия) и с учетом конечного числа ядерных спинов, входящих в полярон (цветные линии) [5].

Так или иначе, для образования ядерного спинового полярона необходимо понизить температуру ЯСС до величин порядка долей микрокельвин. Получение столь низкой спиновой температуры ограничивается несколькими факторами. Диполь-дипольный резервуар, в который ядерные спины отдают свою энергию при формировании поляронного состояния, является неидеальным термостатом (имеет конечную теплоемкость). Величина поляризации электронных

спинов также влияет на спиновую температуру [4] (для образования полярона при температуре решетки 4 К она превышает среднюю электронную поляризацию, которую имеют электроны в объемных образцах). Также важным фактором, ограничивающим получение низкой температуры ЯСС, является величина локального поля ядер  $B_L$ . В экспериментах величины спиновых температур, достигнутые в результате оптического охлаждения во внешнем поле  $\theta_N$  и адиабатического размагничивания в локальное поле  $\theta_{N,adiab}$  связаны между собой условием неизменности энтропии ЯСС в процессе адиабатического размагничивания:

$$\theta_{N,adiab} = \theta_N \sqrt{\frac{B_L^2}{B_z^2 + B_L^2}}, \quad (1.32)$$

где  $\theta_N$  – ядерная спиновая температура, достигнутая в результате оптического охлаждения,  $B_z$  – продольное магнитное поле, в котором проходило оптическое охлаждение.

Из формулы видно, что чем меньше локальное поле, тем ниже  $\theta_{N,adiab}$  возможно достичь. В объемном GaAs  $B_L = 1.4$  Гс [12], что при оптическом охлаждении до температуры  $\theta_N \sim 10^{-4}$  К в поле  $B_z = 100$  Гс дает возможность получить  $\theta_{N,adiab} \sim 10^{-7}$  К. Однако наличие квадрупольных взаимодействий может на порядок увеличить локальное поле, что приведет к повышению минимальной возможной ядерной спиновой температуры [26].

Выявление наличия квадрупольных взаимодействий, а также выяснение их источников в объемных образцах  $n$ -GaAs, для которых предсказано образование поляронных состояний, является важным шагом на пути к экспериментальному детектированию ядерного спинового полярона. Основная оригинальная часть данной диссертации будет посвящена методике выявления квадрупольных взаимодействий в объемных кристаллах  $n$ -GaAs.

## 1.8 Роль квадрупольных взаимодействий ядерных спинов в квантовых точках, квантовых ямах, образцах с микрорезонаторами и в объемных образцах

В зависимости от величины приложенной к структуре деформации, используются разные методы изучения реакции структуры на нее. В случае приложения сильного напряжения или

деформации для изучения искажения изучаемого материала, используют методы дифракции электронов, фотонов или нейтронов. Однако в случае слабых деформаций (как созданных внешне, так и вызванных строением кристалла) материалы могут давать интересные оптические отклики, для изучения которых требуются иные методы [34]. В случае изучения деформаций и эффектов, связанных с ними, в полупроводниковых наноструктурах активно используют метод классического ЯМР, а также метод оптически детектируемого ЯМР (ОДЯМР), о которых было сказано в начале данной главы.

Несколько вводных слов про квадрупольное взаимодействие в ядерной спиновой системе было сказано в разделе 1. 1. 6. В общем случае источником квадрупольных эффектов в полупроводниках и полупроводниковых наноструктурах является несферическое распределение заряда ядер атомов со спином  $I \geq \frac{1}{2}$  (рисунок 13). Такое распределение заряда создает электрический квадрупольный момент, который взаимодействует с градиентом электрических полей в образце. Источники таких градиентов могут отличаться для объемных полупроводников и для наноструктур на их основе. Стоит отметить, что у ядер отсутствует электрический дипольный момент, и поэтому они не взаимодействуют с однородными электрическими полями. В следующих разделах будут рассмотрены источники квадрупольных взаимодействий в квантовых точках, квантовых ямах, микрорезонаторах и в объемных полупроводниках.

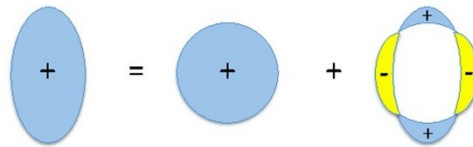


Рисунок. 13 – Схематическое изображение ядра с несферическим распределением заряда. Его можно представить как сферически-симметричное распределение заряда плюс положительный заряд и полоса отрицательного заряда, распределенная вокруг экватора.

### 1.8.1 Роль квадрупольных эффектов в квантовых точках

Из-за деформации решетки квадрупольные эффекты в квантовых точках (КТ) играют важную роль в ядерной спиновой динамике по сравнению с недеформированными объемными образцами. Известно, что если кристалл имеет кубическую симметрию (как, например, объемный GaAs), то в нем отсутствуют градиенты электрических полей и квадрупольных взаимодействий нет. Но в случае с самоорганизованными КТ (к примеру, таких, как InAs/GaAs) кубическая симметрия подавляется из-за двухосной деформации, вызванной рассогласованием решеток у InAs и GaAs порядка 7% [35]. Также в процессе роста происходит взаимная диффузия атомов In и Ga. Это приводит к тому, что значительная часть атомов As имеет неидентичных ближайших соседей. Так, возникающая деформация в КТ приводит к градиенту электрического поля (ГЭП), направленного либо вдоль оси  $\langle 111 \rangle$ , либо вдоль  $\langle 100 \rangle$ . Направление оси тензора ГЭП  $z'$  относительно оси роста КТ  $z$  задается углом  $\Theta$  для каждого ядра в КТ (рисунок 14 (а)). Тогда Гамильтониан, описывающий квадрупольные взаимодействия в КТ, имеет следующий вид:

$$\hat{H}_Q = \frac{\hbar\omega_Q}{2} \left( \hat{I}_{z'}^2 - I(I+1) \right), \quad (1.33)$$

где  $\hbar\omega_Q$  – величина квадрупольного расщепления,  $\hat{I}_{z'}$  - проекция ядерного спина на ось тензора ГЭП. Можно записать проекцию ядерного спина в осях КТ:  $\hat{I}_{z'} = \hat{I}_z \cos(\Theta) + \hat{I}_x \sin(\Theta)$ . Тогда Гамильтониан запишется следующим образом:

$$\hat{H}_Q = \frac{\hbar\omega_Q}{2} \left( \hat{I}_z^2 \cos^2(\Theta) - \frac{I(I+1)}{3} + (\hat{I}_z \hat{I}_x + \hat{I}_x \hat{I}_z) \sin(\Theta) \cos(\Theta) + \hat{I}_x^2 \sin^2(\Theta) \right). \quad (1.34)$$

Часто для простоты предполагают, что ГЭП имеет аксиальную симметрию вдоль оси роста КТ. Это значит, что величина квадрупольного взаимодействия не зависит от направления оси ГЭП  $z'$  в плоскости  $(x, y)$  и определяется углом  $\Theta$  между осью роста  $z$  и осью ГЭП  $z'$ .

В нулевом магнитном поле при наличии квадрупольных взаимодействий ядерные спиновые уровни энергии расщепляются на систему не эквидистантных дублетов (рисунок 14 (b)). Расстояния между соседними дублетами определяются величиной квадрупольного расщепления  $\hbar\omega_Q$ .

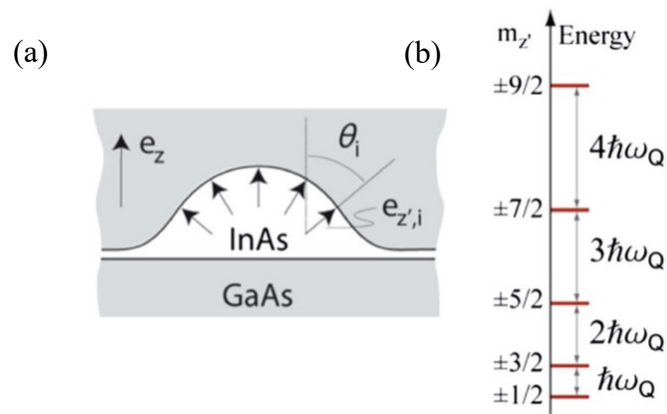


Рисунок 14 – (а) Схематическое изображение направления расщепления в КТ InAs/GaAs; (b) Расщепление ядерных спиновых уровней энергии на систему дублетов для спина  $I = 9/2$ .

Далее будут приведены результаты некоторых работ, в которых изучались явления в ЯСС, вызванные квадрупольными эффектами.

Динамика квадрупольных ядерных спинов в квантовых точках InAs/GaAs изучалась в работе [36] на примере двух образцов, которые отличались температурами отжига и, как следствие, величиной деформации. Для изучения динамики ЯСС измерялись кривые деполяризации ФЛ в поперечных магнитных поля (кривые Ханле) при различных частотах модуляции поляризации накачки. Основной экспериментальный эффект заключался в модификации кривой Ханле с ростом периода модуляции: исчезала W-особенность в слабых поперечных магнитных полях и происходило сужение кривой Ханле. Для объяснения этого эффекта авторы работы предложили модель, которая учитывала отдельно динамику дипольного ядерного поля, которое задается поляризацией дублета  $\pm 1/2$ , и отдельно динамику квадрупольного ядерного поля, которое задается дублетами  $\pm \frac{3}{2}, \dots, \pm \frac{9}{2}$ . Динамики этих двух компонент ядерного поля характеризуются временами релаксаций, следовательно различие времен релаксации этих компонент определяет динамику кривой Ханле. Для образца с меньшей величиной деформации слабая модуляция накачки подавляет дипольную компоненту ядерного поля, что приводит к исчезновению W-особенности, но при этом квадрупольная компонента частично сохраняется и стабилизирует электронную спиновую поляризацию в больших магнитных полях. При быстрой модуляции подавляются обе компоненты, поэтому электронный спин деполяризуется в поперечном поле быстрее и кривая Ханле сужается. Для образца с большей деформацией эти две компоненты подавляются синхронно, поэтому исчезновение W-особенности и сужение кривой Ханле с ростом периода модуляции происходит параллельно.

В работе [37] для таких же образцов с квантовыми точками, как и в работе [36], изучались переходы между ядерными квадрупольными уровнями энергии с помощью метода резонансной

оптической накачки электронно-ядерной спиновой система во внешнем поперечном магнитном поле. Суть метода заключалась в измерении кривых Ханле при различных частотах модуляции поляризации накачки, а также при приложении переменного магнитного поля на частоте, равной частоте модуляции. При этом во время записи кривой Ханле частота была фиксированной. Так, выбрав определенную частоту и сканируя поперечное магнитное поле, можно пройти через резонансы различных квадрупольных изотопов (In, Ga и As). При подходе к резонансу появляется ядерная намагниченность, перпендикулярная внешнему поперечному магнитному полю. Она создана ядерными спинами конкретного изотопа, которые прецессируют в данном поперечном поле. Такая прецессия наряду с модуляцией поля Найта поддерживает электронную спиновую поляризацию, что приводит к пику в кривой Ханле. Таким методом были детектированы резонансы In, Ga и As ядер, которые соответствуют как внутри дублетным переходам, расщепленными внешним магнитным полем, так и междублетным переходам. Положения этих резонансов для двух образцов были разными, что объясняется различной величиной квадрупольного взаимодействия в образцах. Предложенная авторами теоретическая модель, которая учитывала Зеемановское расщепление ядерных спиновых состояний в присутствии квадрупольных расщеплений, позволила идентифицировать каждый экспериментально наблюдаемый резонанс. Модель имела только один подгоночный параметр – компоненту двуосной деформации  $\varepsilon_b = 2\varepsilon_{zz} - \varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}$ , которая совпала с величиной, полученной ранее из структурного моделирования квантовых точек.

Таким образом, метод измерения кривых Ханле позволяет изучать электронно-ядерную спиновую динамику при сильных квадрупольных взаимодействиях, которые характерны для квантовых точек. Данный метод был также успешно использован в работе [34], где изучалась ядерная спиновая динамика при быстром сканировании переменного магнитного поля во время записи кривой Ханле. А в работах [39, 40] показана эффективность использования ОДЯМР для структурного анализа КТ, а также использование переменного магнитного поля для управления ядерными спиновыми состояниями в КТ.

Вышеупомянутые методы эффективно использовать для изучения явлений, связанных с квадрупольными взаимодействиями в полупроводниковых наноструктурах (например, в КТ). В оригинальной части данной диссертации изучались объемные кристаллы GaAs, в которых квадрупольные эффекты гораздо слабее. Предложенная в диссертации методика спектроскопии отогрева ядерных спинов позволяет изучать слабые квадрупольные эффекты.

Как было отмечено в пункте 1. 1. 6., наличие ядерных квадрупольных взаимодействий в образце характеризуется ненулевыми компонентами тензора ГЭП. Формы тензоров, формирующих тензор ГЭП, зависят от симметрии кристаллической решётки. Для кристаллов, имеющих кристаллическую решетку цинковой обманки, градиенто-эластический тензор 4-го

ранга  $S_{ijkl}$  имеет только три ненулевые компоненты:  $S_{11}$ ,  $S_{12}$  и  $S_{44}$ , тензор жесткости 4-го ранга  $C_{ijkl}$  имеет также только три ненулевые компоненты:  $C_{11}$ ,  $C_{12}$  и  $C_{44}$  [41]. Для пьезоэлектрических материалов, к которым относятся полупроводники группы АЗВ5, характерны пьезоэлектрические свойства, которые выражаются в возникновении внутреннего электрического поля и диэлектрической поляризации кристалла, что также может привести к квадрупольным взаимодействиям. Так, для кристаллов, имеющих структуру цинковой обманки, пьезоэлектрический тензор 3-го ранга имеет три равных друг другу ненулевых компоненты:  $R_{14} = R_{25} = R_{36}$ . Необходимые для оригинальной части диссертации значения компонент данных тензоров приведены в таблице 2.

Знание величин ненулевых компонент тензоров, которые отвечают за тот или иной вид деформации в изучаемом кристалле, необходимы для определения насколько и в каких направлениях деформирован кристалл, либо какую величину имеет встроенное электрическое поле (в случае диэлектрических материалов). Для материала GaAs были проведены экспериментальные работы по определению значений компонент данных тензоров. Так, в работах [42, 43] авторы определяли компоненты тензора  $S_{ijkl}$  для изотопов In, Sb, Ga и As в объемных материалах InAs, InSb, GaAs GaSb и AlSb методом ядерного акустического резонанса. Позже авторы работ [23, 44] методом ЯМР в КТ GaAs/AlGaAs уточнили величины компоненты данного тензора для изотопов  $^{69,71}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$  (величины этих компонент приведены в таблице 2 и используются для анализа экспериментальных результатов в данной диссертации). В работе [24] с помощью метода импульсного ЯМР в присутствии внешнего однородного электрического поля авторы получили величины ненулевых компонент пьезоэлектрического тензора для изотопов  $^{69,71}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$ . Эти компоненты также необходимы для анализа экспериментальных данных в данной диссертации. Они приведены в таблице 2 в пересчете с учетом более точных величин констант квадрупольного взаимодействия, полученных в работе [22].

### 1.8.2 Роль квадрупольных эффектов в квантовых ямах

Одним из распространенных методов измерения квадрупольно расщепленных уровней энергии ядерных спинов в квантовых ямах (КЯ) является метод оптически детектируемого ядерного магнитного резонанса (ОДЯМР). Например, в работе [45] метод ОДЯМР используется для прямого измерения величины квадрупольного расщепления пиков поглощения для

полупроводников группы АЗВ5 на примере квантовых ям GaAs/AlGaAs. Для этого авторы работы прикладывали к изучаемому образцу внешнее напряжение заранее известной величины в виде изгиба образца и измеряли величину расщепления пиков поглощения изотопов  $^{75}\text{As}$  и  $^{69}\text{Ga}$ : центральная линия в спектре поглощения, соответствующая переходу  $-\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$ , сопровождается низкочастотным и высокочастотным сателлитами, соответствующие переходам  $\pm\frac{1}{2} \rightarrow \pm\frac{3}{2}$ . Разница по частоте между центральной линией и сателлитом связана с величиной заранее известного приложенного изгиба и с соответствующей компонентой тензора ГЭП. Таким образом авторы независимо получили величину этой компоненты, которая совпала с величиной, полученной из экспериментов по ядерному акустическому резонансу. Это, в частности, подтверждает эффективность метода ОДЯМР для определения величин внутренних деформаций в образцах, вызванных, к примеру, рассогласованием постоянных решеток ямы и барьеров, как в случае с КЯ.

В работе [46] на примере двух образцов с пятью GaAs/AlGaAs КЯ разной ширины с помощью метода ОДЯМР были измерены расщепления пика поглощения изотопа  $^{75}\text{As}$  в различных точках в плоскости и в глубине образца. Для одного из образцов были получены спектры ОДЯМР от одной КЯ, ближайшей к поверхности образца. Спектры измерялись в разных точках на поверхности образца с пространственным разрешением 50 мкм. Квадрупольное расщепление при этом варьировалось от 1 кГц до 12 кГц, что соответствует изменению напряжений  $\epsilon < 4.7 * 10^{-6}$  до  $\epsilon = 5.7 * 10^{-5}$ . При этом квадрупольное расщепление не менялось вглубь образца. Данное напряжение вызвано одноосной деформацией из-за рассогласования постоянных решеток ямы и барьеров и направлено вдоль оси роста образца. На поверхность второго образца был нанесен металлический контакт, который формировал барьер Шоттки и являлся источником эклектического поля. Т. к. в GaAs расположение ядер в решетки не имеет инверсионной симметрии, то электрическое поле вызывает искажение распределения зарядов вокруг ядер, что приводит к квадрупольным расщеплениям, которые меняются вглубь образца. Так, квадрупольные расщепления от самой узкой КЯ до самой широкой, расположенных друг от друга на расстоянии 210 нм, отличались на 3.2 кГц, что соответствовало изменению электрического поля на 390 кВ/м. Таким образом, в данной работе авторы показали, что источниками квадрупольных расщеплений в образцах с КЯ являются одноосная деформация и внутреннее электрическое поле, которые имеют пространственный разброс. Однако авторы отмечают, что разделить эти два вклада в квадрупольное расщепление из данных экспериментов непросто. Также было бы желательно измерить полный тензор деформации. Для этого необходимо менять направление внешнего магнитного поля. В частности, нужно провести измерения, когда направление поля совпадает с направлением главной оси тензора ГЭП и



квадрупольные взаимодействия подавляются. В оригинальной части данной диссертации частично была выполнена эта задача: были измерены спектры поглощения в четырех взаимных ориентациях постоянного и переменного магнитных полей, тем самым независимо определены величины различных вкладов в квадрупольное расщепление изучаемого образца.

Указанные в работе [46] возможные источники напряжений (условия роста структуры, тип подложки, различные коэффициенты теплового расширения образца, держателя и клея), вызывающие квадрупольные взаимодействия, важны для объяснений природы квадрупольных расщеплений, наблюдаемых в спектрах поглощения объемных образцов *n*-GaAs.

### 1.8.3 Роль квадрупольных эффектов в объемных материалах группы АЗВ5

Метод ЯМР (стационарный и импульсный) успешно используется для изучения квадрупольных эффектов в объемных полупроводниках, в которых квадрупольное взаимодействие может появляться, например, за счет различных внешних воздействий на кристалл или за счет легирования.

Как уже было сказано выше, в объемных полупроводниках, которые имеют кубическую группу симметрии (к ним относятся полупроводники группы АЗВ5 и, в частности, GaAs) в отсутствии внешних воздействий на кристалл все компоненты тензора ГЭП равны нулю и квадрупольное взаимодействие отсутствует. В работе [47] к объемным кристаллам InSb и GaSb, которые имеют кубическую симметрию, прикладывали внешнее напряжение, меняющее симметрию кристаллов и вызывающее квадрупольные эффекты. Напряжение прикладывалось различной величины и в различных кристаллографических направлениях, что позволяло из кубически симметричного кристалла получить кристалл иной симметрии. Для детектирования наличия квадрупольных взаимодействий в деформированных кристаллах, измерялись спектры ЯМР, в которых наблюдалось квадрупольное расщепление резонансных линии поглощения. Полученное расщепление связывали с величиной приложенного напряжения. Авторы отмечают, что из экспериментов возможно детектировать величину деформации, меньше, чем  $10^{-4}$ , а также применить метод ЯМР в обратном направлении: для проверки степени совершенства кристаллической решетки.

В работе [48] с помощью метода импульсного ЯМР было исследовано влияние изовалентных примесей на появление ГЭП в объемных кристаллах GaAs, легированными атомами In различной концентрации на примере измерения спектра ЯМР изотопов  $^{75}\text{As}$ .

### 1.9 Влияние квадрупольных эффектов на величину локального поля

Наличие квадрупольных взаимодействий в полупроводнике может в несколько раз увеличить величину локального поля, обусловленного диполь-дипольными взаимодействиями между ядерными спинами. В отсутствие квадрупольных эффектов, в объемном GaAs величина локального поля определяется чисто диполь-дипольными взаимодействиями и равна  $B_L = B_{dd} = 1.4$  Гс [12]. Про то, что такое локальное поле было сказано в разделе 1. 1. 2. Также выше было отмечено, что величина локального поля определяет минимально возможную спиновую температуру, которую можно достичь методом оптического охлаждения с последующим адиабатическим размагничиванием. Сейчас хочется отметить влияние квадрупольных эффектов на величину локального поля и, соответственно, на величину ядерной спиновой температуры на примере работы [26], в которой с помощью метода спектроскопии спинового шума (СШ) изучались образец *n*-GaAs, встроенный в микрорезонатор (МР) и объемный образец *n*-GaAs. Основной идеей данной работы было показать возможность установления ядерной спиновой температуры в образце с МР, в котором имеется квадрупольное взаимодействие из-за напряжений между зеркалами резонатора и GaAs. Однако хотелось бы осветить данную работу с точки зрения влияния квадрупольных взаимодействий на величину локального поля и на спиновую температуру.

Для того, чтобы охладить ядерные спины, авторы использовали метод оптической накачки в продольном магнитном поле  $B_z$ , затем поле  $B_z$  выключалось и шел этап адиабатического размагничивания, в течение которого поперечная компонента поля  $B_{\perp}$  сканировалась от -50 Гс до 0 Гс, затем от 0 до 50 Гс, и измерялся сигнал спинового шума. Результаты данных экспериментов при двух знаках спиновой температуры приведены на рисунке 15 для образца с МР (рисунок 15 (a), (b)) и для объемного образца (рисунок 15 (c), (d)).

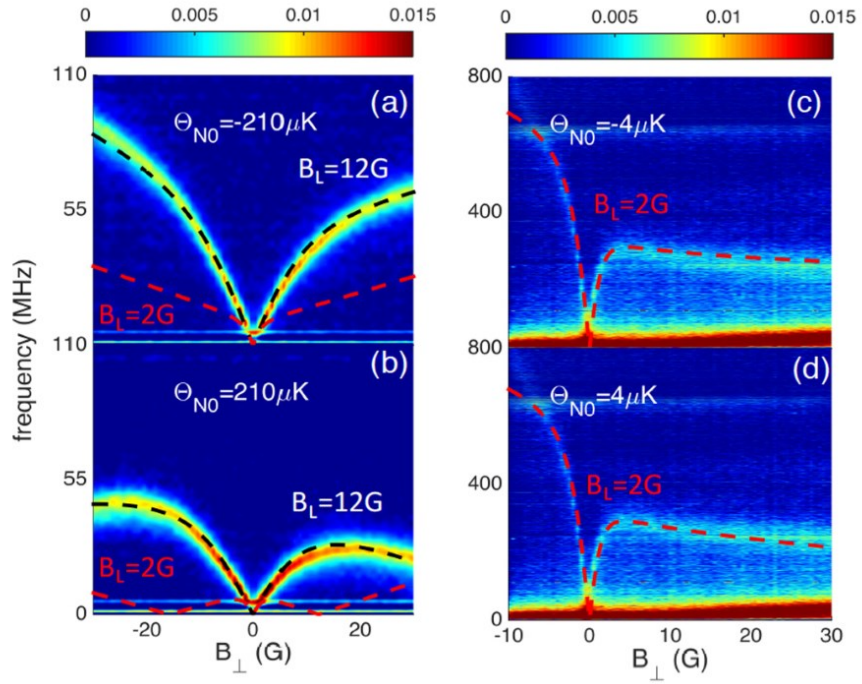


Рисунок 15 – Эволюция сигнала спинового шума в процессе адиабатического размагничивания (диапазон полей от -50 Гс до 0 Гс) и намагничивания (диапазон полей от 0 до 50 Гс) для образца с МР (а), (д) и для объемного образца (с), (д). Черными пунктирными линиями обозначены подгоночные функции для экспериментальных данных на образце с МР, красными пунктирными линиями обозначены подгоночные функции с фиксированной величиной локального поля  $B_L = 2$  Гс, которое ожидается для объемного образца.

Эволюция сигнала СШ с полем  $B_{\perp}$  характеризуется изменением частоты прецессии электронного спина в суммарном поле  $B_{\perp} + B_N$ , где  $B_N$  – поле Оверхаузера, полученное в результате оптического охлаждения, которое за время сканирования поля  $B_{\perp}$  релаксирует (этим объясняется несимметричность полученных экспериментальных кривых относительно  $B_{\perp} = 0$ ). Экспериментальные данные подгоняются формулой:

$$\theta_N = \frac{\theta_{Ni} \sqrt{B_L^2 + B_{\perp}^2}}{B_z}, \quad (1.35)$$

где  $\theta_{Ni}$  – ядерная спиновая температура, полученная после оптического охлаждения в поле  $B_z$ . Подгоночными параметрами являлись величина локального поля  $B_L$  и спиновая температура после адиабатического размагничивания  $\theta_{N0} = \frac{\theta_{Ni} B_L}{B_z}$ . Для образца с МР величина локального поля получилась  $B_L = 12$  Гс (рисунок 15 (а), (б)), в то время как для объемного образца локальное

поле получилось близким к ожидаемому:  $B_L = 2$  Гс. Разница величин локальных полей в шесть раз объясняется наличием квадрупольных взаимодействий в образце с МР из-за напряжений между зеркалом и GaAs. При этом величина спиновой температуры  $\theta_{N0}$  для образца с МР также получилась выше, чем для объемного образца: 6 мК по сравнению с  $\pm 4$  мК.

Таким образом работа [26] является ярким примером того, как наличие квадрупольных взаимодействий приводит к увеличению спиновой температуры, тем самым осложняя достижения температур, необходимых для перехода ЯСС в поляронное состояние (см. раздел 2.2).

Одной из задач, решаемой в данной диссертации, является изучение слабых квадрупольных взаимодействий, возникающих в объемных образцах  $n$ -GaAs, которые увеличивают локальное поле и минимально возможную спиновую температуру.

### 1.10 Отогрев ядерных спинов переменным магнитным полем

В данном разделе будет приведена теория отогрева ядерных спинов переменным магнитным полем, необходимая для понимания физической сути экспериментов по измерению спектров поглощения.

В нулевом магнитном поле теплоемкость ЯСС определяется диполь-дипольными взаимодействиями между соседними ядерными спинами. Теплоемкость характеризуется тем, какую энергию может получить или отдать система при изменении ее температуры. Наличие ненулевой теплоемкости диполь-дипольного резервуара энергии ЯСС в отсутствие внешнего магнитного поля позволяет ядерным спинам поглощать энергию переменного магнитного поля.

Под действием переменного магнитного поля на частоте  $\omega$ , энергия ЯСС  $E_{NSS}$  в расчете на один спин меняется со скоростью  $q_\omega$ :

$$q_\omega = \frac{\partial E_{NSS}}{\partial t} = -\left\langle \frac{\partial B(t)}{\partial t} M(t) \right\rangle = \frac{\partial B(t)}{\partial t} \sum_i x_i \hbar \gamma_{Ni} I_i(t), \quad (1.36)$$

где  $M(t)$  – магнитный момент ядра, индуцированный переменным магнитным полем  $B(t)$ ,  $x_i$  – изотопная доля  $i$ -го изотопа,  $I_i$  – средний спин ядра  $i$ -го изотопа.

Переменное магнитное поле, направленное вдоль оси  $x$ , имеет вид:

$$B_x(t) = B_1 \cos(\omega t) = B_1 \left( \frac{e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}}{2} \right). \quad (1.37)$$

Средний ядерный спин, направленный вдоль переменного магнитного поля:

$$I_{ix}(t) = \frac{M_i(t)}{\hbar\gamma_{Ni}} = \frac{\chi_\omega B_x(t)}{\hbar\gamma_{Ni}} = \frac{\chi_\omega B_1 \left( \frac{e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}}{2} \right)}{\hbar\gamma_{Ni}}, \quad (1.38)$$

где  $\chi_\omega$  – восприимчивость ЯСС на частоте  $\omega$ .

Восприимчивость можно представить через ее действительную и мнимую части:  $\chi_\omega = \chi'_\omega - i\chi''_\omega$ . Тогда средний ядерный спин:

$$I_{ix}(t) = \frac{B_1}{\hbar\gamma_{Ni}} (\chi'_\omega \cos(\omega t) - \chi''_\omega \sin(\omega t)). \quad (1.39)$$

Среднее за период изменение энергии ЯСС по действием переменного магнитного поля с учетом того, что  $\frac{\partial B(t)}{\partial t} = B_1 \omega \sin(\omega t)$ :

$$q_\omega = \frac{1}{2} B_1^2 \omega \sum_i x_i \chi_{i\omega}'' . \quad (1.40)$$

Флуктуационно-диссипативная теорема связывает мнимую часть восприимчивости  $\chi_\omega''$  и спектральную плотность флуктуации  $I_{x,\omega}^2$ :

$$\chi_{i\omega}'' = \frac{1}{2} \beta \omega (\hbar\gamma_{Ni})^2 I_{ix,\omega}^2, \quad (1.41)$$

где  $\beta$  – обратная спиновая температура.

А спектральная плотность флуктуаций представляет собой Фурье-образ коррелятора полного ядерного спина  $G_{i\omega}$ :

$$\langle I_{x,\omega}^2 \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} \langle I_i(0)I_i(t) \rangle \frac{dt}{spI_x^2} = \frac{1}{3} I(I+1)G_{i\omega}. \quad (1.42)$$

С учетом последних двух уравнений, а также используя формулу для теплоемкости ЯСС во внешнем поле  $B$ :  $C_N = \frac{1}{3}I(I+1)(B^2 + B_L^2)\hbar^2 \sum_i x_i \gamma_{Ni}^2$ , можно записать уравнение для скорости отогрева ЯСС  $\frac{1}{T_{RF}}$  переменным полем на частоте  $\omega$ :

$$\left(\frac{1}{T_{RF}}\right)\omega = \frac{q\omega}{C_N\beta} = \frac{\omega^2}{4} \frac{B_1^2}{B^2 + B_L^2} G_\omega. \quad (1.43)$$

Из формулы для отогрева (1.43) видно, что даже при  $B = 0$  ЯСС способна поглощать энергию переменного магнитного поля. Также эта формула задает связь между скоростью отогрева на частоте  $\omega$ , которую можно измерить экспериментально (см. раздел 2.1.4), и Фурье-образом коррелятора  $G_\omega$  полной намагниченности ЯСС.

По определению, коррелятор связывает направление полного ядерного спина в момент времени  $t$  с направлением полного ядерного спина в момент времени  $t_1$ :

$G(t_1 - t) = \langle I(t)I(t_1) \rangle$ , где усреднение происходит по всем возможным реализациям направления полного ядерного спина. Однако усреднение по направлениям можно заменить на усреднение по времени, тогда корреляции намагниченности можно рассматривать как связь между направлением полного ядерного спина в момент времени  $t = 0$  с любым другим моментом времени  $t$ :  $G(t) = \langle I(0)I(t) \rangle$ . При устремлении времени к бесконечности, корреляции между начальным и конечным направлениями полного ядерного спина исчезают и  $G = 0$ . И наоборот, в нулевой момент времени состояние можно считать полностью скоррелированным и  $G = 1$ . Коррелятор характеризует флуктуации намагниченности ЯСС. В частности, наличие флуктуаций является необходимым условием для поглощения ядерными спинами переменного магнитного поля: если бы флуктуаций не было, то в любой момент времени состояние ЯСС было бы скоррелированным, частотная зависимость Фурье-образа коррелятора  $G_\omega$  имела бы узкий пик на нулевой частоте, при этом  $\frac{1}{T_{RF}} = 0$  (ЯСС не поглощает переменное магнитное поле).

Поэтому наличие диполь-дипольных взаимодействий позволяет измерять спектры поглощения и коррелятора ЯСС даже в нулевом магнитном поле.

### 1.11 Охлаждение ядерных спинов во вращающейся системе координат

Основным методом охлаждения ЯСС является оптическая поляризация ядерных спинов с последующим адиабатическим размагничиванием в локальное поле. При температуре решётки 4 К с помощью такого метода была достигнута ядерная спиновая температура порядка  $10^{-6}$  К для объемного образца [7] и  $\pm 4 \mu\text{K}$  для образца в микрорезонаторе [26]. Данный метод получения низких спиновых температур является достаточно простым и не требует высоких магнитных полей и криостата растворения. Наряду с традиционным адиабатическим размагничиванием в системе координат, связанной с направлением статического магнитного поля, из которого происходит размагничивание, также существует метод адиабатического размагничивания во вращающейся системе координат (ВСК). Данный метод описан в работах [49,50] и позволяет увеличить время релаксации повернутой ядерной намагниченности от  $T_2 \sim 100 \mu\text{s}$  до нескольких секунд с помощью приложения поддерживающего импульса (такой способ называется spin locking). Такую долгоживущую повернутую относительно направления статического поля ядерную спиновую поляризацию можно характеризовать ядерной спиновой температурой, которую возможно понизить, адиабатически медленно уменьшая амплитуду поддерживающего поля. Опишем более подробно процесс адиабатического размагничивания во ВСК.

Изначальная поляризация ядерных спинов происходит за счет их сверхтонкого взаимодействия с поляризованными по спину электронами в некотором внешнем статическом магнитном поле  $B_0$ . Полученную таким образом начальную ядерную намагниченность можно повернуть на  $90^\circ$  относительно направления поля  $B_0$  с помощью приложения радиочастотного (РЧ) поля  $B_1 \perp B_0$ . Будем рассматривать поведение повернутой намагниченности в системе координат, вращающейся на частоте приложенного РЧ поля  $\omega$ . Во ВСК вектор намагниченность будет прецессировать вокруг эффективного поля  $B_{eff}$  [51]:

$$B_{eff} = \sqrt{\left(B_0 - \frac{\omega}{\gamma_N}\right)^2 + B_1^2}. \quad (1.44)$$

Вдали от резонанса вектор намагниченности прецессирует в  $B_{eff}$ . При адиабатическом размагничивании намагниченность будет следовать по направлению эффективного поля  $B_{eff}$ , и при точном попадании в резонанс, когда  $B_{eff} = B_1$ , намагниченность будет направлена вдоль  $B_1$ .

При этом из условия сохранения энтропии ЯСС в процессе адиабатического размагничивания ядерная спиновая температура будет понижаться до величины  $\theta_{N0}$ :

$$\theta_{N0} = \theta_N \frac{\sqrt{B_1^2 + B_L^2}}{\sqrt{B_{eff}^2 + B_L^2}}, \quad (1.45)$$

где  $\theta_N$  – ядерная спиновая температура, достигнутая в результате оптического охлаждения,  $B_L$  – локальное поле.

Стоит отметить, что релаксация ЯСС во ВСК аналогична спин-решеточной релаксации ядерных спинов в слабых магнитных полях. Поведение спиновой температуры и намагниченности при традиционном адиабатическом размагничивании и при размагничивании во ВСК имеет одинаковую зависимость от величины приложенного магнитного поля (рисунок 16). Когда внешнее поле становится порядка локального поля, то спиновая температура перестает меняться, т. к. из условия постоянства фактора Больцмана  $\frac{\mu_b B_{eff}}{k_b \theta_N} = const$ , необходимого для адиабатического размагничивания, при  $B_{eff} \sim B_L$  энергия ЯСС  $\mu_b B_L = const$ , а значит и температура  $\theta_N$  не должна меняться. При этом согласно закону Кюри, температура остается практически постоянной в полях, больших локальных полей. При дальнейшем понижении поля, в случае размагничивания во ВСК, намагниченность будет затухать со скоростью спин-решеточной релаксации, а в случае традиционного размагничивания со скоростью спин-спиновой релаксации  $\sim T_2$ .

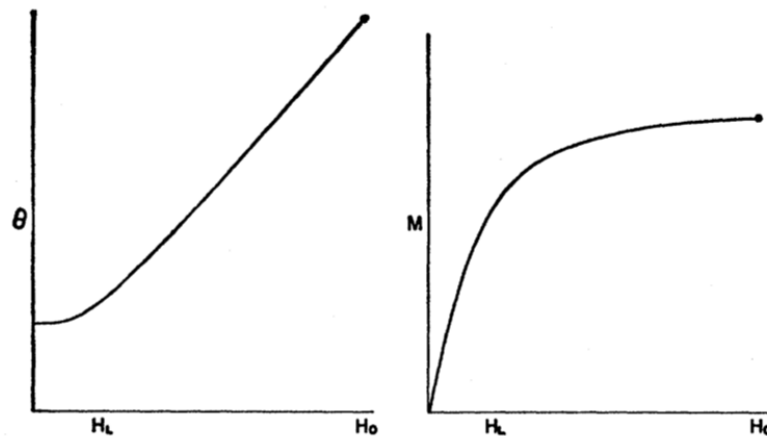


Рисунок 16 – Поведение ядерной спиновой температуры  $\theta$  и ядерной намагниченности  $M$  в процессе адиабатического размагничивания.

Одной из главных особенностей метода адиабатического размагничивания ядерных спинов во ВСК является возможность селективного охлаждения выбранного изотопа в изучаемом



материале. Так, достигнутое при предварительном оптическом охлаждении поле Оверхаузера создается не тремя (в случае GaAs) ядерными изотопами, а только одним из них, что соответствует более низкой температуре ядерных спинов выбранного изотопа.

В оригинальной части диссертации приведены результаты экспериментов по адиабатическому размагничиванию во ВСК диполь-дипольного + квадрупольного резервуара ядерных спинов изотопа  $^{75}\text{As}$  в слабелегированной КЯ GaAs/AlGaAs, а также расчет диполь-дипольного и квадрупольного вкладов в величину локального поля. Полученная ядерная спиновая температура имеет рекордно низкое значение  $\Theta_N = 0.54 \mu\text{K}$ .

## Глава 2. Изучаемые образцы и экспериментальные методики

В данной главе диссертации будут представлены две экспериментальные части. Первая часть будет посвящена методике спектроскопии отогрева ядерных спинов. В рамках данной методики было измерено локальное поле ядерных спинов в объемном образце *n*-GaAs. Также получены спектры поглощения ядерных спинов в объемных образцах *n*-GaAs с различными концентрациями донорной примеси. Теоретическое описание частотных положений пиков поглощения во внешних магнитных полях позволило определить тип и величину квадрупольных взаимодействий в изучаемых образцах. Во второй части будут приведены эксперименты по селективному охлаждению ядерных спинов изотопа  $^{75}\text{As}$  во вращающейся системе координат нелегированной квантовой ямы GaAs/AlGaAs. Такое охлаждение позволило понизить ядерную спиновую температуру изотопа  $^{75}\text{As}$  до рекордно низкой величины.

### 2.1 Спектроскопия отогрева ядерных спинов

#### 2.1.1 Изучаемые образцы

С помощью спектроскопии отогрева ядерных спинов были изучены три образца объемного *n*-GaAs с концентрацией донорной примеси в диапазоне от изолирующей до металлической фазы (таблица 4).

Таблица 4 – Характеристики образцов *n*-GaAs, которые были исследованы с помощью методики спектроскопии отогрева.

Образец	Метод роста	Концентрация доноров, см <sup>-3</sup>	T, К	d, мкм
S1	Жидкофазная эпитаксия (LPE)	~10 <sup>15</sup>	20	40
S2	Жидкофазная эпитаксия (LPE)	2*10 <sup>15</sup>	16	20
S3	Молекулярно-лучевая эпитаксия (MBE)	9*10 <sup>16</sup>	10	2

### 2.1.2 Измерение степени поляризации фотолюминесценции

Создание и измерение ядерной поляризации проходило через детектирование степени поляризации фотолюминесценции (ФЛ). Для детектирования сигнала ФЛ была создана экспериментальная установка, приведенная на рисунке 17. Исследуемые образцы были помещены в криостат замкнутого цикла при температуре  $T = 10 - 20$  К. Источником непрерывной накачки служил лазерный диод с длиной волны излучения  $\lambda_{pump} = 780$  нм. Лазерный луч мощностью  $P = 15$  мВт проходил через четверть волновую пластинку  $\frac{\lambda}{4}$  и фокусировался на изучаемом образце. Поляризованная ФЛ собиралась линзой в параллельный пучок в геометрии на отражение, проходила через фотоупругий модулятор (PEM), работающий на частоте 50 кГц, призму Глана-Тейлора (GT) и фокусировалась на входной щели спектрометра iHR 550, одна выходная щель которого была оснащена CCD-камерой Symphony II, охлаждающаяся с помощью жидкого азота, а другая - фотодиодом. Фотодиод был соединен с двухканальным счетчиком фотонов, синхронизованным с фотоупругим модулятором. CCD-камера использовалась в основном для получения спектров ФЛ, которые приведены на рисунке 18 сплошными линиями для трех изучаемых образцов (приведенные спектры являются нормированными). Спектры поляризации ФЛ были измерены с помощью фотодиода. Они приведены на рисунке 18 полыми кружками. Для приложения внешних магнитных полей вдоль и поперек луча накачки использовались две пары катушек, которые создавали магнитные поля до 400 Гс. Также в экспериментах по спектроскопии отогрева ядерных спинов было необходимо компенсировать земные магнитные поля вокруг образца, т. к. измерения проходили в полях,

меньших земных. Для этого были сконструированы три пары катушек Гельмгольца, которые позволяли скомпенсировать магнитные поля Земли в трех направлениях с точностью до  $5 \cdot 10^{-3}$  Гс. Также внутри криостата рядом с изучаемым образцом были встроены две катушки, которые создавали переменные магнитные поля вдоль и поперек луча накачки в диапазоне частот от единиц Гц до сотен кГц. Рабочим диапазоном были частоты от 100 Гц до 120 кГц.

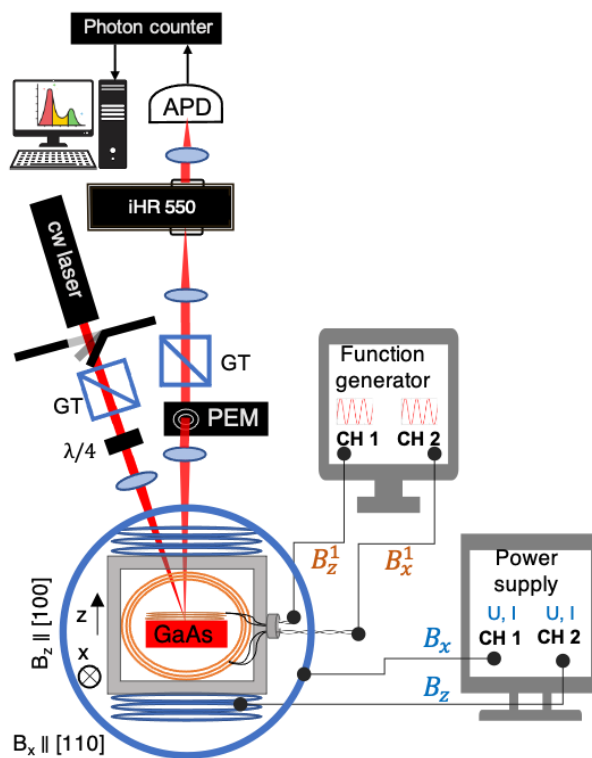


Рисунок 17 – Схема экспериментальной установки по спектроскопии отогрева ядерных спинов объемных образцов *n*-GaAs. Красными линиями показан ход луча накачки и сигнала ФЛ. Синим цветом обозначены катушки, которые создают постоянные магнитные поля вдоль ( $B_z$ ) и поперек ( $B_x$ ) лучу накачки. Токи через эти катушки управляются с помощью двухканального источника питания (Power supply). Оранжевым цветом обозначены катушки переменного поля, которые создают поля также в двух направлениях: вдоль ( $B_z^1$ ) и поперек ( $B_x^1$ ) лучу накачки. Частота и амплитуда переменного тока, идущего через них, регулируются с помощью двухканального функционального генератора (Function generator).

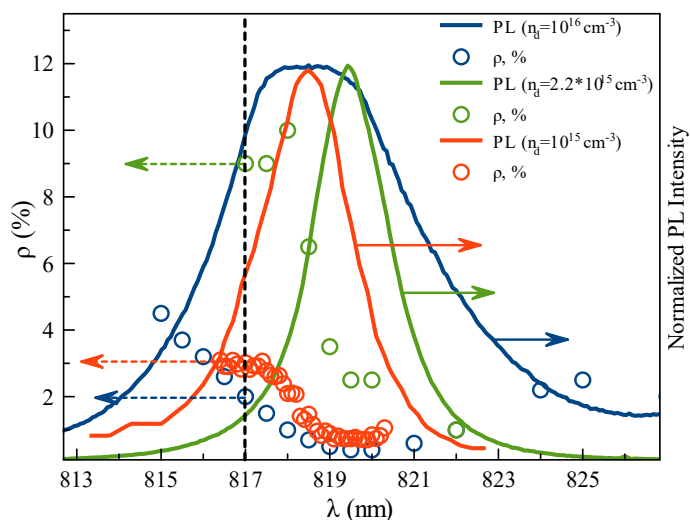


Рисунок 18 – Спектры ФЛ (сплошные линии) и поляризации ФЛ (полые кружки), измеренные с помощью CCD-камеры при температурах  $T = 10 - 20 \text{ K}$  для трех исследуемых образцов. Черная вертикальная линия показывает длину волны детектирования  $\lambda_{det} = 817 \text{ нм}$  и соответствующие ей степени поляризации ФЛ для трех образцов.

Для измерения степени поляризации излучения существуют различные методики. Самой простой из них является поочередное детектирование интенсивностей излучения в двух поляризациях. Для этого свет пропускают через пластинку  $\frac{\lambda}{4}$  и поляризатор, после чего сигнал регистрируется детектором. Поворотом пластинки осуществляется изменение направления поляризации. Для автоматического изменения направления поляризации используется фотоупругий модулятор. Он пропускает право- и лево- циркулярно-поляризованное излучение поочередно на некоторой частоте модуляции, что эквивалентно повороту пластинки  $\frac{\lambda}{4}$  на  $\pm 45^\circ$ . Чтобы посчитать отдельно количество фотонов, которые имеют право-циркулярную поляризацию  $N_+$ , и отдельно количество фотонов, имеющих лево-циркулярную поляризацию  $N_-$ , чтобы затем пересчитать из них степень поляризации  $\rho = \frac{N_+ - N_-}{N_+ + N_-}$ , можно использовать двухканальный счетчик фотонов. Существуют коммерческие двухканальные счетчики фотонов (например, SR 400). Но в описанной далее установке был использован самодельный счетчик фотонов, т. к. предполагалось, что ФЛ будет иметь маленькую степень поляризации, поэтому была важна полная симметричность двух каналов. Счетчик состоял из микросхемы сдвоенного четырехразрядного двоичного счетчика с индивидуальной синхронизацией и сбросом КР1533ИЕ19, который управлялся программируемым микроконтроллером Atmega 162, оснащенный внешним 16-ти мегагерцовым источником тактовой частоты (рисунок 19). С

помощью микрокода можно задавать длительность ворот счета фотонов  $\Delta t$ , а также время их следования  $\tau$ . Для счета фотонов в двух поляризациях нужно синхронизовать эти ворота с полупериодами модуляции фотоупругого модулятора (рисунок 20). Так, на первом полупериоде счетчик считает количество фотонов, имеющих право-циркулярную поляризацию, и записывает их в первый регистр памяти, на втором полупериоде счетчик считает количество лево-циркулярно-поляризованных фотонов и записывает их во второй регистр памяти. В течение секунды отсчеты в каждом канале накапливаются и затем с помощью программы, написанной на LabView, сохраняются на диске компьютера. Важным фактором, влияющим на точность определения степени поляризации ФЛ, является то, чтобы длительности двух ворот были одинаковыми. В данном методе измерения степени поляризации ФЛ это обеспечивает использование одного счетчика для формирования двух ворот. На выбор длительности ворот влияет два фактора. Первым является то, что чем меньше ширина ворот  $\Delta t$ , тем точнее будет определяться степень поляризации ФЛ (т. к. РЕМ является строго  $\pm \frac{\lambda}{4}$  только в максимумах модуляции). С другой стороны, узкие ворота считают меньшее число фотонов, что повлияет на уровень детектируемого сигнала и, следовательно, на уровень шума. Для того, чтобы выбрать длительность ворот, была измерена степень поляризации света, имеющего 100 % поляризацию, в зависимости от длительности ворот (рисунок 21 (а)). Как видно из рисунка, при длительности ворот от 1 до 4 мкс степень поляризации остается постоянной, но при дальнейшем увеличении длительности она начинает резко падать. Поэтому в микрокод была записана  $\Delta t = 2$  мкс. Точность определения степени поляризации, а также ее стабильность во времени гарантируют надежность полученных экспериментальных данных. Так, предложенная выше схема измерения степени поляризации ФЛ, позволяет стабильно детектировать степень поляризации с точностью до 0.02%. Для определения погрешности нуля была измерена степень поляризации лампочки накаливания в течении 2000 с. Т. к. лампочка является источником неполяризованного излучения, то критерием точности определения степени поляризации служил стабильный уровень нуля на рисунке 21 (b).

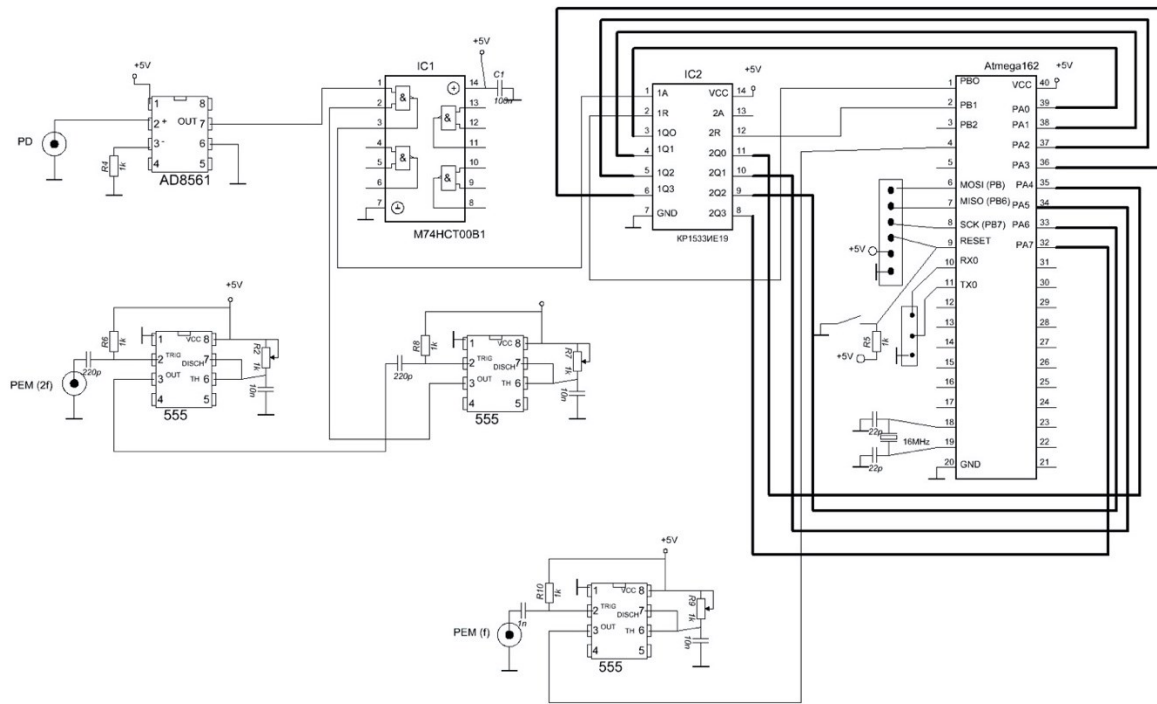


Рисунок 19 – Схема двухканального счетчика фотонов. Импульсы лавинного фотодиода PD подаются на дискриминатор и стробируются при помощи микросхемы 4-И, после чего считаются счетчиком. Опорный сигнал второй гармоники с фотоупругого модулятора задерживается аналоговым таймером 555 и определяет момент начала ворот. Окончание ворот задается микроконтроллером. Для этого на вход аппаратного прерывания подается сигнал первой гармоники фотоупругого модулятора.

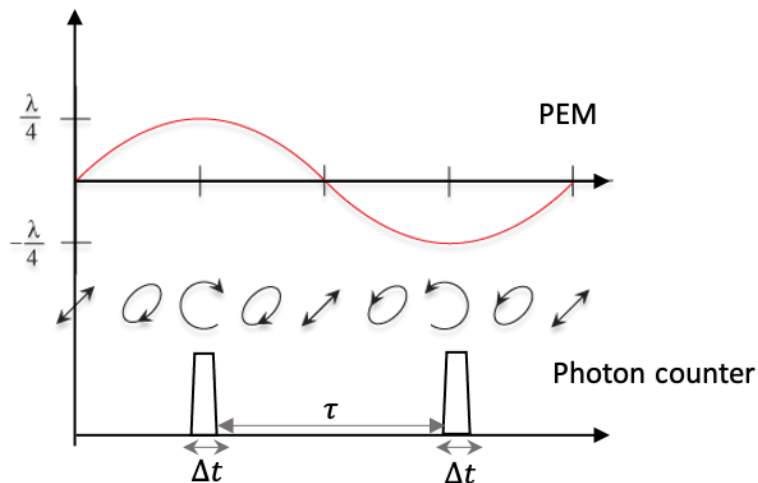


Рисунок 20 – Схематичное изображение синхронизации полупериодов фотоупругого модулятора (PEM) и ворот счетчика фотонов (photon counter).

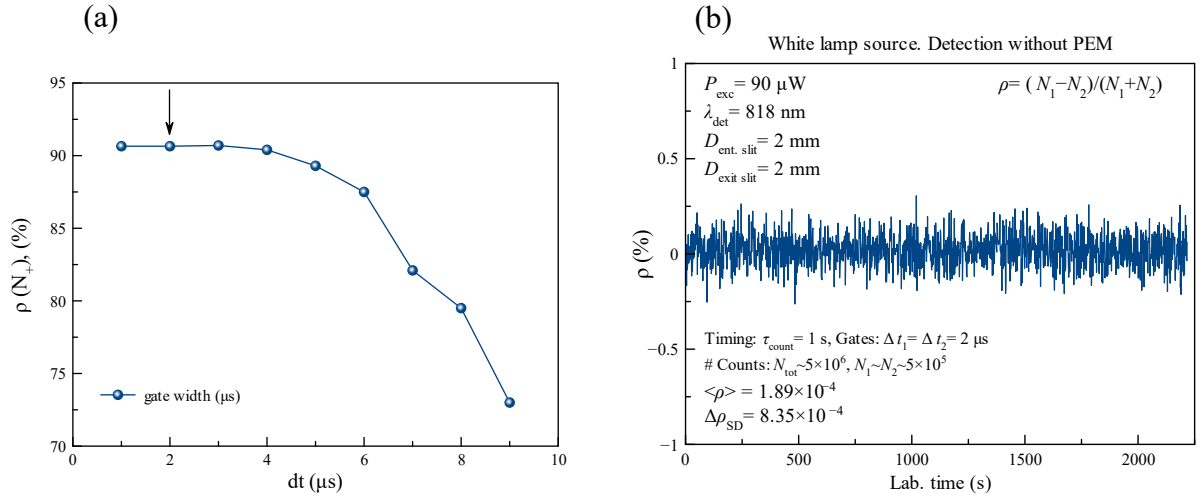


Рисунок 21 – (а) Зависимость степени поляризации от ширины ворот. Стрелкой показана выбранная ширина ворот; (б) Измерение степени поляризации лампы накаливания со временем. Данный рисунок показывает стабильность сигнала во времени, а также точность определения степени поляризации.

Все экспериментальные результаты были получены через детектирование сигнала поляризованной ФЛ на длине волны  $\lambda_{\text{det}} = 817 \text{ nm}$  с помощью фотодиода. Данная длина волны соответствует одновременно высокому уровню сигнала и достаточной степени поляризации ФЛ и обозначена на рисунке 18 вертикальной черной линией.

### 2.1.3 Детектирование ядерной поляризации по эффекту Ханле

Деполяризация ФЛ с ростом внешнего поперечного магнитного поля называется эффектом Ханле. Электронные спины теряют свою поляризацию за счет Ларморовой прецессии в поперечном поле на частоте  $\Omega = \frac{g_0 \mu_B B}{\hbar}$ . Зависимость степени поляризации от величины внешнего поля имеет форму функции Лоренца и характеризуется величиной полуширины на полувысоте  $B_{1/2}$ :

$$\rho(B) = \rho(0) \frac{\frac{B_{1/2}^2}{2}}{B_{1/2}^2 + B^2} \quad (2.1)$$



где  $\rho(0)$  – степень поляризации ФЛ в отсутствии внешнего поля.

Для измерения кривой Ханле свет пропускается через РЕМ (чтобы стирать ядерную поляризацию), фокусируется на образце и затем ФЛ в геометрии на отражение проходит через пластинку  $\frac{\lambda}{4}$ , поляризатор, фокусируется на щели спектрометра и детектируется диодом. В наших экспериментах для создания поперечного магнитного поля вокруг образца устанавливалась пара катушек, которые создают поле перпендикулярное лучу накачки величиной до 400 Гс. Измеряя кривые Ханле при различной мощности накачки  $P$ , можно получить зависимость  $B_{1/2}$  от  $P$ , которую затем экстраполировать в нулевую мощность, и по формуле  $B_{1/2}(P=0) = \frac{\hbar}{g_0 \mu_B T_s}$  найти время жизни электронного спина  $T_s$ . На рисунке 22 приведены кривые Ханле (цветные точки), измеренные на образце  $n$ -GaAs ( $n_d = 2 * 10^{15} \text{ см}^{-3}$ ) для трех мощностей накачки: 5, 15 и 25 мВт при длине волны детектирования  $\lambda_{det} = 816$  нм. Полученные кривые подгонялись функциями Лоренца (цветные линии) с подгоночными параметрами  $B_{1/2}$ . Затем строилась зависимость  $B_{1/2}(P)$  (рисунок 22, вставка) и вычислялось время жизни электронного спина:  $T_s = 2.7$  нс.

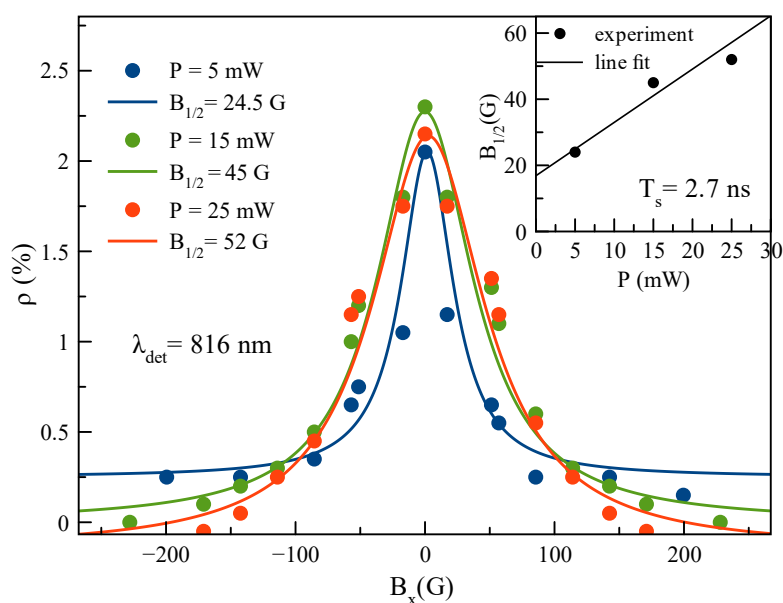


Рисунок 22 – Кривые деполаризации ФЛ (кривые Ханле), измеренные при длине волны детектирования  $\lambda_{det} = 816$  нм при мощностях накачки 5, 15 и 25 мВт (синие, зеленые и красные точки). Подгонка полученных кривых функциями Лоренца (синие, зеленые и красные линии). Зависимость полуширины на полувысоте функций Лоренца  $B_{1/2}$  от мощности накачки (вставка), из которой получено время жизни электронного спина  $T_s = 2.7$  нс.

Эффект Ханле является основой для экспериментов по детектированию ядерной поляризации, достигнутой в результате оптического охлаждения. Такой эксперимент состоит из двух стадий. Вначале идет оптическое охлаждение ядерных спинов. Для этого образец

освещается циркулярно-поляризованным светом в течение времени  $t_{cooling}$  в продольном магнитном поле  $B_z$ . В течение оптического охлаждения накапливается ядерное поле за счет сверхтонкого взаимодействия ядерных спинов с поляризованными электронами. Затем поле  $B_z$  выключается и включается маленькое измерительное поперечное поле  $B_x < B_L$ , достигнутое на первой стадии ядерное поле  $B_N$  поворачивается по направлению к полю  $B_x$ . В итоге электроны чувствуют суммарное поперечное поле  $B_x \pm B_N$  и в первый момент времени деполаризуются в нем по эффекту Ханле. Затем ядерное поле  $B_N$  релаксирует за счет спин-решеточной релаксации и электронная поляризация восстанавливается. Пример такого эксперимента приведен на рисунке 23 для времени охлаждения  $t_{cooling} = 4$  мин и величины продольного поля  $B_z = 100$  Гс. Скачок степени поляризации в момент времени  $t = 360$  с соответствует началу второго этапа, когда включается поперечное поле  $B_x$  и электронный спин деполаризуется в поле  $B_x + B_N$ . Величина этого скачка связана с ядерным полем, полученным в процессе оптического охлаждения. Есть несколько методов его извлечения из экспериментальной кривой. Один из простых методов является подгонка начального участка второго этапа линейной функцией  $\rho(t) = a * (t - 360c) + \rho_0$ , где  $\rho_0$  – степень поляризации в первый момент времени второго этапа, связанная с ядерным полем. Подгоночными параметрами являлись величины  $a$  и  $\rho_0$  (рисунок 23 (a)).

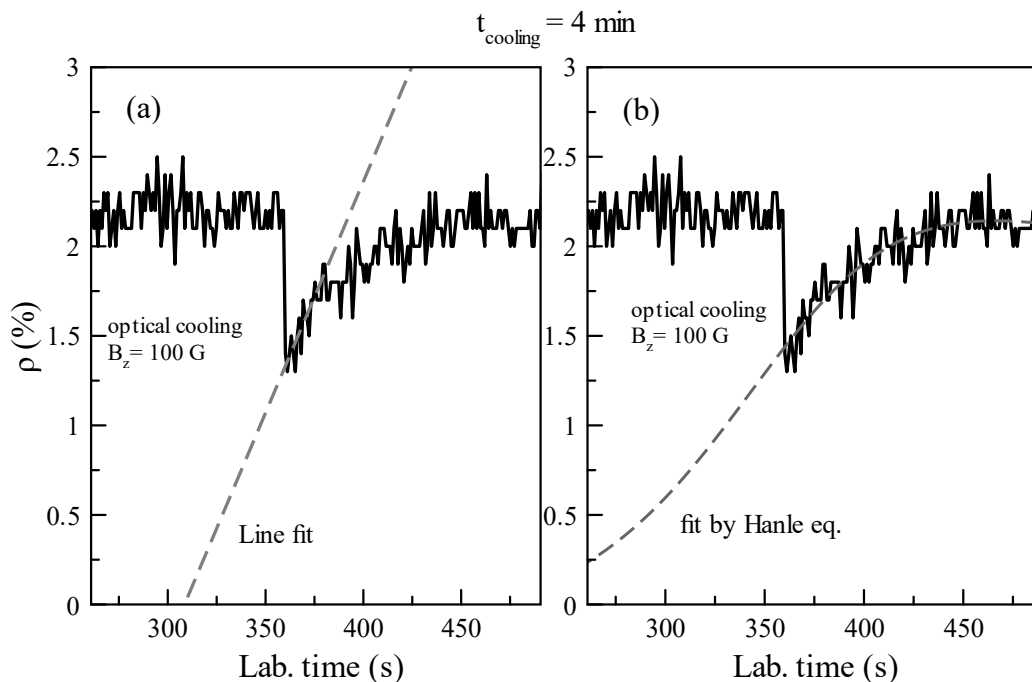


Рисунок 23 – Пример двух-стадийного эксперимента, в котором вначале происходит поляризация ядерных спинов методом оптического охлаждения, а затем измерение получившегося ядерного поля. Для извлечения ядерного поля можно использовать (a) линейную подгонку второго измерительного этапа (серая штриховая прямая) или (b) подгонку, которая учитывает всю динамику поляризации (серая штриховая кривая).

Однако линейная подгонка учитывает только линейную динамику поляризации в первые несколько секунд. При этом дальнейшая нелинейная динамика в подгонке никак не учитывается, что может повлиять на точность определения ядерного поля. Поэтому более надежным способом обработки экспериментальной кривой является подгонка всей динамики поляризации на втором этапе (рисунок 23 (b)). Такая подгонка будет использоваться далее для обработки экспериментов по спектроскопии отогрева ядерных спинов и подробно описана в разделе 2.1.4.

На эффективность оптического охлаждения и, как следствие, на величину ядерного поля, влияют длительность охлаждения  $t_{cooling}$  и величина продольного поля  $B_z$ . Вид двух-стадийных кривых, а также величины ядерных полей (вставка) в зависимости от времени охлаждения приведены на рисунке 24. Так, в качестве примера были получены кривые для 2, 3 и 4 минут охлаждения в продольном поле  $B_z = 100$  Гс. Как видно из рисунка 24, с ростом времени охлаждения скачок поляризации растет, что говорит о росте ядерного поля. Из полученных двух-стадийных кривых извлекались ядерные поля (с помощью подгонки всей динамики второго этапа). На вставке приведена зависимость ядерных полей от длительности охлаждения (синие точки). Данная зависимость подгоняется линейной функцией, которая при  $t_{cooling} = 0$  дает нулевое ядерное поле. На масштабах времен в несколько минут полученную зависимость можно считать линейной. Рост ядерного поля с увеличением длительности оптического охлаждения является предсказуемым: в течение этапа охлаждения ядерная поляризация распространяется от донора на периферию благодаря спиновой диффузии (см. раздел 1.2.4.) и чем дольше этот этап, тем дальше от доноров ядерная поляризация распространится. Однако при длительном охлаждении (в течение часа и более) наступает насыщение ядерной поляризации.

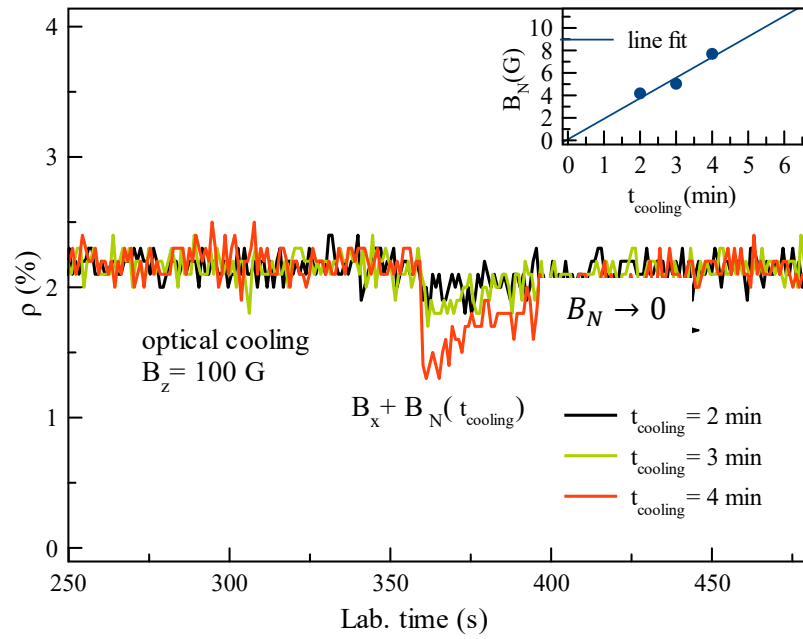


Рисунок 24 – Примеры двух-стадийных кривых для времен охлаждения  $t_{cooling} = 2, 3$  и 4 минуты в продольном поле  $B_z = 100$  Гс. Зависимость ядерного поля от времени охлаждения (вставка, точки).

Линейная подгонка получившейся зависимости (вставка, линия).

Вид двух-стадийных кривых, а также величины ядерных полей (вставка) в зависимости от продольного поля  $B_z$  при фиксированном времени охлаждения  $t_{cooling} = 4$  мин приведены на рисунке 25.

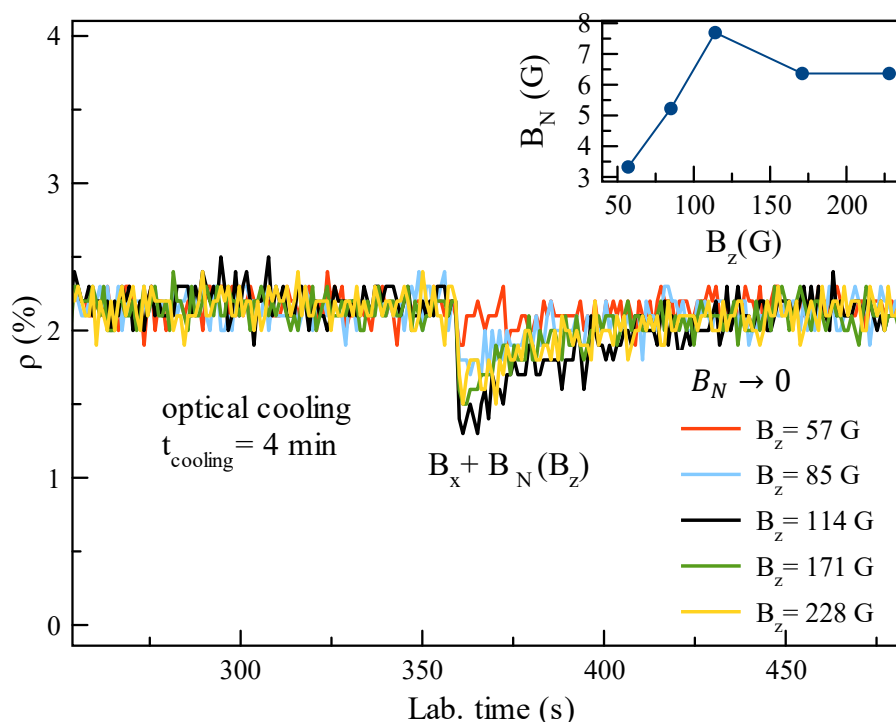


Рисунок 25 – Примеры двух-стадийных кривых для времени охлаждения  $t_{cooling} = 4$  минуты в продольных полях  $B_z = 57, 85, 114, 171$  и  $228$  Гс. Зависимость ядерного поля от величины продольного поля (вставка, точки).

Как видно из рисунка 25, с ростом продольного поля, как и с ростом времени охлаждения, скачок степени поляризации растет, поэтому растет и ядерное поле. Однако в полях около 100 Гс рост прекращается и наступает насыщение.

Для каждого изучаемого образца время охлаждения и величина поля  $B_z$  подбираются эмпирическим способом. Рисунки 24 и 25 является только примерами того, как меняется вид кривой с ростом времени охлаждения и поля  $B_z$ . Из приведенных выше примеров, оптимальными являлись бы время  $t_{cooling} = 4$  минуты и поле  $B_z = 100$  Гс.

Для методики спектроскопии отогрева ядерных спинов между этапом оптического охлаждения и измерительным этапом есть еще стадия приложения переменного магнитного поля в течение нескольких секунд, которое стирает ядерную поляризацию, достигнутую в результате охлаждения до некоторой величины, которая зависит от частоты и амплитуды переменного поля. Чтобы реализовать данный этап, были сконструированы радиочастотные (РЧ) катушки, которые управлялись через генератор (см. схему экспериментальной установки на рисунке 17). Для них была измерена амплитудно-частотная характеристика (АЧХ), которая является линейной в необходимом диапазоне частот (от единиц Гц до ста кГц).

Для того, чтобы измерять кривые в несколько стадий, была создана программа на LabView, через которую можно было задавать различные длительности всех этапов, включать или выключать магнитные поля (как статические, так и переменные) определенной амплитуды. Полученные с помощью данной программы кривые автоматически сохранялись в файл в виде зависимости степени поляризации ФЛ от времени (например, кривые, приведенные на рисунках 24 и 25), а затем полученные данные обрабатывались в программах magicplot и matlab.

#### 2.1.4 Методика спектроскопии отогрева ядерных спинов

Описанная выше экспериментальная установка позволяет понижать температуру ядерных спинов методом оптического охлаждения в продольном магнитном поле  $B_z$  с последующим адиабатическим размагничиванием в локальное поле ядер. Если к охлажденным таким образом до некоторой температуры ( $\sim 10^{-5}$  K) ядерным спином в присутствии некоторого статического магнитного поля  $B_{z,x} = \mu_N \hbar \omega_0$  прикладывать переменное магнитное поле на резонансной частоте  $\omega_0$ , то ЯСС будет его поглощать. Такое резонансное поглощение соответствует повышению спиновой температуры на несколько порядков. Разница между температурами до и после приложения переменного магнитного поля связана с коэффициентом поглощения ЯСС на данной резонансной частоте  $\omega_0$ . Сканируя частоту переменного магнитного поля при неизменной величине статического магнитного поля, можно получить спектр поглощения. На таком принципе основан метод оптически-детектируемого ядерного магнитного резонанса (ОДЯМР), о котором было сказано в главе 1.

Описанная в данной диссертации спектроскопия отогрева ядерных спинов имеет аналогичный принцип, что и метод ОДЯМР, но с некоторыми особенностями: возможность измерять спектры поглощения в нулевом и слабых (сравнимых с локальным полем) статических магнитных полях. Также важной особенностью является возможность получить спектры поглощения в продольной экспериментальной геометрии: когда переменное и статическое магнитные поля имеют одинаковое направление. Из классического ЯМР известно, что в таких геометриях поглощение быстро спадает с ростом статического магнитного поля, однако с помощью метода спектроскопии отогрева возможно измерить спектры поглощения в продольных геометриях для полей  $B_{z,x} \leq 15$  Гс. Таким образом, в предложенном в данной диссертации методе возможно измерять спектры поглощения в четырех конфигурациях

переменного и статического магнитных полей: в двух продольных (когда  $B_z \parallel B_z^1$  или  $B_x \parallel B_x^1$ ) и в двух поперечных (когда  $B_z \perp B_x^1$  или  $B_x \perp B_z^1$ ). Схематическое изображение данных конфигураций для кристаллографических осей образца S1, для которого были получены спектры поглощения во всех этих конфигурациях, приведено на рисунке 26. Переменное магнитное поле обозначено как  $B_1$ , а его направление указано фиолетовой стрелочкой. Направления статических магнитных полей  $B_{z,x}$  обозначены голубыми стрелочками. Направление луча накачки обозначено красной стрелочкой.

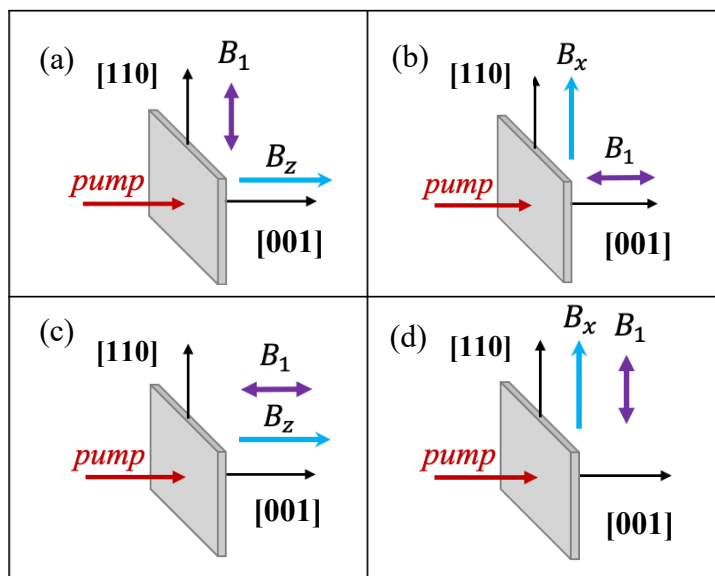


Рисунок 26 – Схематическое изображение четырех экспериментальных геометрий: (a), (b) поперечные геометрии; (c), (d) продольные геометрии. Направления переменного, статического магнитных полей и луча накачки указаны фиолетовой, голубой и красной стрелочками соответственно.

Для ясности стоит подчеркнуть, что катушки, которые создают поля  $B_{z,x}$  используются для оптического охлаждения (катушка, создающая поле  $B_z$ ), для измерительного этапа (катушка, создающая поле  $B_x$ ), а также на этапе приложения переменного поля (используется катушка, создающая поле  $B_z$ , либо катушка, создающая поле  $B_x$ ).

Классические эксперименты для получения спектров отогрева (также их можно называть спектрами поглощения) состоят из четырех стадий: подготовительной, оптического охлаждения с последующим адиабатическим размагничиванием, стадии приложения переменного магнитного поля и измерительной стадии. Остановимся более подробно на их физических принципах.

Поскольку каждый четырех-стадийный эксперимент соответствует измерению коэффициента поглощения при фиксированной частоте переменного поля, то для получения спектра поглощения таких экспериментов нужно сделать несколько десятков (обычно 50-70 экспериментов для получения одного спектра поглощения). Переменное магнитное поле не до конца стирает достигнутое в результате оптического охлаждения ядерное поле, а на измерительной стадии ядерное поле также может не до конца срелаксировать. Поэтому чтобы полностью стереть оставшееся с предыдущего эксперимента ядерное поле (и выровнять ядерную спиновую температуру с температурой решетки), была введена подготовительная стадия, на которой в течение 60 секунд в темноте и в нулевом статическом магнитном поле прикладывалось переменное поле на частоте 3 кГц. Данная частота соответствует частоте максимального поглощения ЯСС при наличии только диполь-дипольных взаимодействий. Благодаря этой стадии можно считать, что оптическое охлаждение при каждом новом эксперименте начинается с одинаковой ядерной спиновой температуры, равной температуре решетки:  $\theta_N = \theta_{latt}$ . Схематическое изображение всех четырех стадий приведено на рисунке 27 (а), а экспериментальные кривые, полученные по такому четырехстадийному протоколу, приведены на рисунке 27 (б).

Следующей стадией следует оптическое охлаждение в течение 120 секунд в продольном магнитном поле  $B_Z = 150$  Гс с дальнейшим адиабатическим размагничиванием. Изучаемый образец облучался циркулярно-поляризованным светом и электронные спины приобретали ненулевую среднюю поляризацию (от 2% до 9% при длине волны детектирования  $\lambda_{det} = 817$  нм в зависимости от образца). Благодаря сверхтонкому взаимодействию между ядерными спинами и электронными спинами, локализованными на донорах, ядерные спины вблизи донора поляризуются за несколько мс, а затем ядерная спиновая поляризация распространяется на периферию за счет спиновой диффузии в течение всего времени оптического охлаждения. Величина ядерного поля и спиновой температуры после охлаждения зависят от длительности охлаждения и от величины продольного поля  $B_Z$ . Время охлаждения 120 секунд и поле  $B_Z = 150$  Гс были выбраны эмпирическим путем. Дальнейшее увеличение поля  $B_Z$  приводит к нагреву магнитных катушек, а времени 120 секунд достаточно, чтобы охладить ядра до низкой температуры, при которой будет заметен эффект отогрева ядер переменным полем. Также стоит отметить, что в данной оригинальной части диссертации не стояла цель достигнуть минимально возможной ядерной спиновой температуры. В течение оптического охлаждения ядерное поле  $B_N(t)$  накапливалось, а спиновая температура понижалась:



$$B_N(t) = \frac{b_N \hbar \overline{\gamma_N} l(l+1)}{k_b} B_Z \beta(t), \quad (2.2)$$

где  $\beta(t) = 1/\Theta_N(t) = \beta(0)e^{\frac{t}{t_p}}$  – обратная спиновая температура в процессе охлаждения,  $\beta(0)$  – величина обратной спиновой температуры до охлаждения ( $\beta(0) = \frac{1}{\theta_{latt}}$ ),  $t_p$  – время охлаждения ( $t_p = 120$  с),  $b_N$  – величина ядерного поля при 100% поляризации ядер,  $\overline{\gamma_N} = \frac{\gamma_N(Ga^{71}) + \gamma_N(Ga^{69}) + \gamma_N(As^{75})}{3}$  – среднее гиромагнитное отношение для изотопов GaAs.

После оптического охлаждения накачка выключалась (луч загоразивал автоматический шаттер), а внешнее поле  $B_Z$  выключалось адиабатически медленно (за 20 мс). Это понижает достигнутую в результате оптического охлаждения ядерную спиновую температуру  $\theta_N$  на несколько порядков до величины  $\theta_N^{ad}$ . Из закона сохранения энтропии в процессе адиабатического размагничивания можно получить связь температур  $\theta_N$  и  $\theta_N^{ad}$ :

$$\theta_N^{ad} = \theta_N \sqrt{\frac{B_L^2}{B_Z^2 + B_L^2}}. \quad (2.3)$$

Из формулы (2.3) видно, что  $\theta_N^{ad}$  отличается от  $\theta_N$  примерно в  $\frac{B_L}{B_Z} \sim 0.007$  раз (при условии, что  $B_L \ll B_Z$ ). В экспериментах на образце S1 по описанному выше протоколу охлаждения была достигнута ядерная спиновая температура  $\theta_N^{ad} \approx 300$  мкК при температуре кристаллической решетки  $\theta_{latt} = 20$  К.

На третьей стадии включалось переменное магнитное поле в темноте в течение 3 секунд. Темнота была необходима для того, чтобы исключить влияние поляризованных электронов на ядерные спины. Время  $t_{RF} = 3$  с было выбрано эмпирическим путем из условия, что на частоте максимального поглощения переменное магнитное поле за время  $t_{RF}$  стирает ядерную поляризацию меньше, чем в два раза и связанное с этим изменение степени поляризации ФЛ можно однозначно задетектировать (на рисунке 27 такое изменение степени поляризации обозначается как  $\rho_{dark}$ ). Как было отмечено выше, каждый четырех-стадийный эксперимент проходит при фиксированной частоте  $f$  и амплитуде  $B_1$  ( $B_Z^1$  или  $B_x^1$ ) переменного поля и при фиксированной величине статического магнитного поля  $B_Z$  или  $B_x$ . Для полей  $B_{Z,x} = 0 - 15$  Гс спектры поглощения измерялись в диапазоне частот от 100 Гц до 40 кГц. Для полей  $B_{Z,x} = 20 - 90$  Гс диапазон частот был от 1 кГц до 130 кГц. Для продольных геометрий амплитуда переменного поля менялась с ростом величины статического поля:  $B_1 = 0.1 - 1$  Гс, т. к. в таких геометриях поглощение быстро спадает с ростом статического поля. Для поперечных геометрий амплитуда переменного поля была фиксированной для всех величин статических полей  $B_1 = 0.1$

Гс. Если частота переменного магнитного поля совпадает с частотой перехода между ядерными уровнями энергий (расщепление ядерных уровней может быть чисто Зеемановским, квадрупольным, либо диполь-дипольным в полях  $B_{z,x} < B_L$ ), то населенности этих уровней выравниваются за счет поглощения мощности переменного поля. Это приводит к повышению ядерной спиновой температуры и к стиранию ядерного поля (в случае, если есть статическое магнитное поле, т. к.  $B_N \sim \beta B_{z,x}$  и при  $B_{z,x} = 0$  ядерного поля нет, а ЯСС характеризуется только спиновой температурой).

Последняя стадия необходима для измерения ядерного поля (или спиновой температуры), которое осталось после воздействия переменного поля данной мощности. Для этого вновь включалась накачка (открывался шаттер) и вместе с ней включалось небольшое измерительное статическое поперечное поле  $B_x \sim 1$  Гс. При этом электронные спины чувствуют не только поле  $B_x$ , а суммарное  $B_{tot} = B_x \pm B_N(f)$ , где  $B_N(f)$  – ядерное поле, которое осталось после воздействия переменного магнитного поля на частоте  $f$ . Оно направлено также, как и поле  $B_x$ , поэтому  $B_{tot}$  для электронных спинов является чисто поперечным полем. Знак “ $\pm$ ” отражает знак спиновой температуры, которая регулировалась на этапе оптического охлаждения взаимным направлением среднего электронного спина и поля  $B_z$ . Таким образом, в первый момент времени на четвертой стадии средний электронный спин чувствует поперечное поле  $B_{tot}$  и по эффекту Ханле деполаризуется (рисунок 27 (b) момент времени  $t_m = 180$  с). Для понимания рисунка 27 (b) важно отметить, что на частоте максимального поглощения ядерное поле стирается значительно, поэтому вклад  $B_N(f)$  в величину  $B_{tot}$  гораздо меньше, чем на остальных частотах, и электронный спин деполаризуется слабее (степень поляризации ФЛ, которая детектируется в эксперименте, меняется от 3% до  $\rho_{dark} = 2\%$ ). Такой ситуации соответствует зеленая экспериментальная кривая на рисунке 27: в нулевом статическом магнитном поле частотой максимального поглощения для образца S1 является  $f = 12$  кГц. Противоположным случаем является эксперимент в отсутствии переменного магнитного поля (синяя экспериментальная кривая на рисунке 27 (b)). Здесь на третьей стадии переменное поле не прикладывалось, поэтому  $B_N$  за 3 секунды темноты почти не изменилось, электроны чувствуют максимальное  $B_{tot}$  и деполаризуются сильно (степень поляризации ФЛ меняется от 3% до  $\rho_{dark} = 1\%$ ). Измерение без переменного поля определяет уровень нуля в спектрах поглощения и такое измерение необходимо для расчета скорости отогрева ядерных спинов. Далее, в течение всей последней стадии, которая длилась 200 секунд, ядерное поле релаксировало за счет спин-решеточной релаксации, что приводило к восстановлению электронной поляризации.

Все четыре стадии управлялись автоматически через компьютер с помощью программы, написанной на LabView специально для данных экспериментов. Программа позволяла автоматически менять частоту переменного поля от эксперимента к эксперименту, сохраняя в

файл данные для каждой частоты (сигнал ФЛ в двух каналах счетчика фотонов в зависимости от времени) при фиксированном статическом магнитном поле. При этом стабильность сигнала позволяла проводить такие длительные измерения.

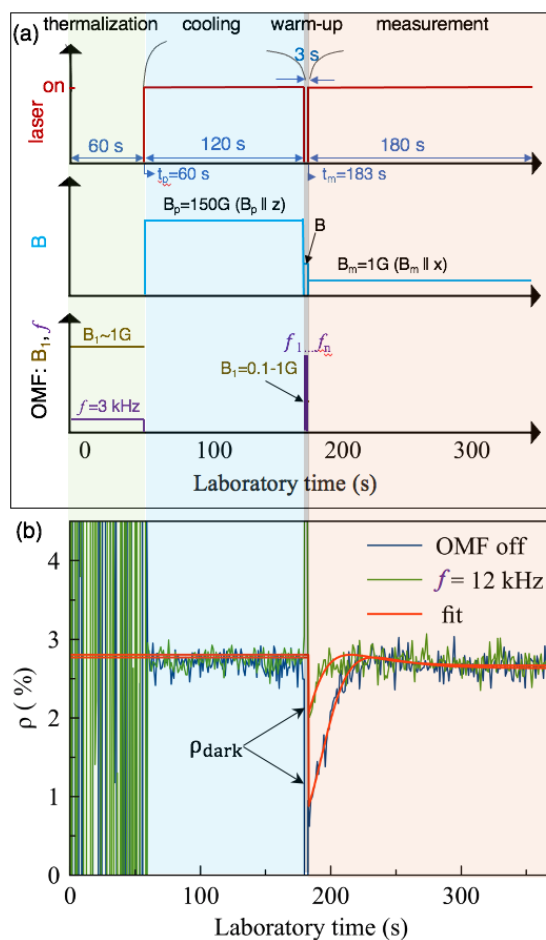


Рисунок 27 – (а) Схема четырехстадийного экспериментального протокола; (б) Экспериментальные кривые, полученные по четырехстадийному протоколу для образца S1. Измерялось изменение степени поляризации ФЛ  $\rho$  в зависимости от времени. Зеленая кривая соответствует эксперименту на частоте максимального поглощения в нулевом статическом магнитном поле  $f = 12$  кГц. Синяя кривая соответствует эксперименту в отсутствии переменного магнитного поля. Красные кривые являются подгончными и строятся по формуле (2.7).

Чтобы получить скорость отогрева ЯСС переменным полем на данной частоте, нужно провести некоторые математические операции. Ядерное поле, которое накопилось на этапе оптического охлаждения  $B_{N0}$  связано с ядерным полем в первый момент времени измерительной стадии  $B_N$  по формуле:

$$B_N = B_{N0} e^{-t_{RF} \left( \frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_{RF}(f)} \right)}, \quad (2.4)$$

где  $\frac{1}{T_1}$  – скорость отогрева ЯСС за счет спин-решеточной релаксации в темноте,  $\frac{1}{T_{RF}(f)}$  – скорость отогрева за счет воздействия переменного магнитного поля на частоте  $f$ .

Аналогичное уравнение можно написать для случая, когда переменное поле не прикладывалось. Тогда ядерное поле в первый момент времени измерительной стадии  $B'_N$  будет другим:

$$B'_N = B_{N0} e^{-\frac{t_{RF}}{T_1}}. \quad (2.5)$$

Поделив уравнение (2.5) на (2.4), можно выразить скорость отогрева  $\frac{1}{T_{RF}(f)}$ :

$$\frac{1}{T_{RF}}(f) = \frac{1}{t_{RF}} \ln \left( \frac{B'_N}{B_N(f)} \right). \quad (2.6)$$

Данная величина  $\frac{1}{T_{RF}}$  является осью ординат в приведенных далее спектрах поглощения.

Чтобы извлечь из экспериментальных кривых величины  $B'_N$  и  $B_N(f)$ , последняя измерительная стадия каждой кривой подгонялась формулой:

$$\rho(t) = \rho_0 \frac{B_{1/2}^2}{B_{1/2}^2 + (B_x + b + (B_N - b) \exp(-\frac{t-t_m}{T_1}))^2}, \quad (2.7)$$

где  $B_{1/2}$  – полуширина на полувисоте кривой Ханле ( $B_{1/2} = 10$  Гс для образца S1 при мощности накачки 15 мВт и длине волны детектирования 817 нм),  $B_x = 1$  Гс – измерительное поле,  $t_m = 180$  с – время начала измерительного этапа,  $b$  – ядерное поле, которое создается поляризованными электронами в процессе измерительного этапа. Оно отвечает за уровень, на который выходит степень поляризации ФЛ,  $T_1$  – время спин-решеточной релаксации на свету. Для образца S1  $T_1 = 25$  секунд. Подгоночным параметром являлось ядерное поле  $B_N$ , оставшееся в момент времени  $t_m$ , которое необходимо для вычисления скорости поглощения  $\frac{1}{T_{RF}}$ .

Так, каждая экспериментальная кривая подгонялась формулой (2.7), что давало набор значений  $B_N(f)$  и одно общее значение  $B'_N$  для спектра поглощения в данном статическом магнитном поле. Примеры подгоночных кривых приведены на рисунке 27 (b) красными линиями.

Стоит отметить, что данная подгонка имеет преимущество над способом получения скорости отогрева просто по величинам степени поляризации  $\rho_{dark}$  в момент времени  $t_m$ , поскольку при подгонки всей динамики измерительной стадии степень точности, с которой определяются поля  $B_N(f)$  и  $B'_N$  гораздо выше, а значит и уровень шума спектров поглощения будет незначительным.

Таким способом были получены скорости отогрева для всех четырех экспериментальных конфигураций для образца S1, для двух конфигураций для образца S2 и для одной конфигурации для образца S3, анализ которых будет приведен в главах 3 и 4.

## 2.2 Адиабатическое размагничивание во вращающейся системе координат

### 2.2.1 Изучаемый образец и экспериментальная установка

В экспериментах по адиабатическому размагничиванию во вращающейся системе координат (ВСК) были изучен образец, выращенный методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке GaAs. Он состоял из 13-ти нелегированных квантовых ям GaAs/Al<sub>0.35</sub>Ga<sub>0.65</sub>As толщиной от 2.8 нм до 39.3 нм, разделенных барьерами толщиной 30.9 нм.

Образец был помещен в заливной гелиевый криостат, который охлаждал образец до температуры  $T = 5.5$  К. Для измерения спектра фотолюминесценции образец накачивался циркулярно-поляризованным светом, источником которого служил лазер с энергией излучения  $E_{exc} = 1.55$  эВ, проходящий через четвертьволновую пластинку (рисунок 28). Фотолюминесценция (ФЛ) в геометрии на отражение собиралась в параллельный пучок линзой, модулировалась чоппером, соединенным с локином, рассеивалась спектрометром и детектировалась лавинным фотодиодом. Спектр ФЛ приведен на рисунке 29 на примере 19.7 – нм квантовой ямы. Максимум интенсивности ФЛ наблюдается при энергии 1.5267 эВ, которой соответствует рекомбинация нейтрального экситона. Поэтому для всех последующих измерений лазерный диод был настроен на энергию накачки, близкой к резонансу:  $E_{exc} = 1.5276$  эВ.

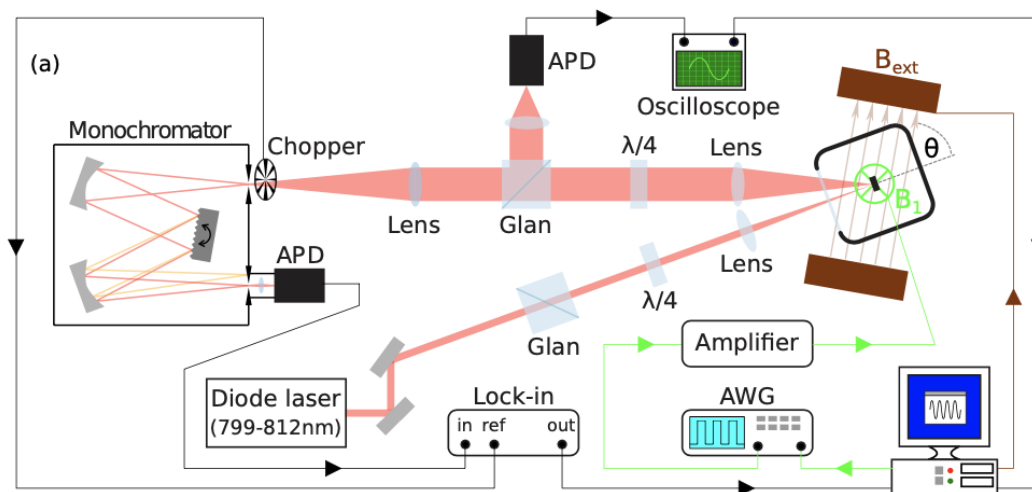


Рисунок 28 – Схема экспериментальной установки для экспериментов по адиабатическому размагничиванию ядерных спинов во вращающейся системе координат.

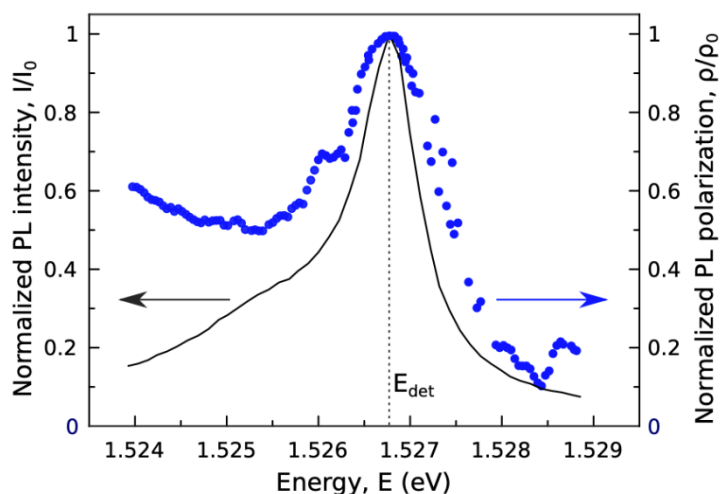


Рисунок 29 – Спектр фотолюминесценции для 19.7 – нм квантовой ямы, полученный при температуре  $T = 5.5$  К (черная кривая). Спектр поляризации ФЛ изображен синими кружками. Штриховой вертикальной линией отмечена энергия детектирования, которая использовалась в измерениях.

Для реализации адиабатического охлаждения во вращающейся системе координат, внутрь криостата рядом с образцом была помещена радиочастотная катушка, ток через которую подавался от функционального генератора (AWG) и управлялся через компьютер. Также была возможность задавать последовательность импульсов на разных амплитудах, фазах и различной длительности. Внешнее статическое магнитное поле  $B_{ext}$  создавалось катушкой, расположенной вокруг криостата. Направление внешнего поля имело наклон  $\theta = 66^\circ$  относительно оси роста образца. Это было необходимо для того, чтобы имея одну катушку, можно было измерять кривую

деполяризации Ханле (для этого нужна поперечная относительно луча накачки компонента поля  $B_{ext}$ ) и создавать ядерную поляризацию (с помощью продольной компоненты).

### 2.2.2 Методика экспериментов по адиабатическому охлаждению ядерных спинов во вращающейся системе координат

Экспериментальный протокол для адиабатического охлаждения ЯСС во вращающейся системе координат состоял из трех основных стадий. Первой стадией было создание ядерной спиновой поляризации через сверхтонкое взаимодействие с поляризованными электронами. Для создания ненулевой поляризации электронных спинов образец накачивался циркулярно-поляризованным светом во внешнем магнитном поле  $B_{ext} = 7.5$  кГс. Направление циркулярной поляризации света было выбрано так, чтобы внешнее и ядерное поля имели противоположные направления. Важным моментом является то, что таким образом можно было создать поляризацию только спинов изотопа  $^{75}\text{As}$ , спиновая поляризация изотопов  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{71}\text{Ga}$  при этом стиралась в течение всей первой стадии с помощью сканирования переменного магнитного поля вблизи их резонансных частот (7.64 и 9.7 МГц в поле  $B_{ext} = 7.5$  кГс). Время первой стадии определялось динамикой ядерных спинов. Так, например, если накачивать все три изотопа при угле наклона внешнего поля  $\theta = 66^\circ$ , то ядерное поле достигает величины, компенсирующей внешнее поле, за 300 секунд (момент, когда ядерное поле полностью компенсирует внешнее поле, детектируется по восстановлению и выходу на плато степени поляризации ФЛ). Однако в случае, когда поляризация ядерных спинов изотопов Ga стирается, то для накачки ядер изотопа  $^{75}\text{As}$  требуется почти в три раза больше времени: 1000 секунд.

Вторая стадия начинается после того, как ядерное поле скомпенсирует внешнее:  $B_N = -B_{ext}$  (рисунок 30 (b)). После этого генератор подает последовательность  $\frac{\pi}{2}$  импульсов с амплитудой  $B_1 = 21$  Гс, которые поворачивают среднюю ядерную намагниченность  $M_{As}$  изотопа  $^{75}\text{As}$  перпендикулярно к направлению статического поля  $B_{ext}$  (рисунок 30 (c)). Далее включалось поддерживающее радиочастотное поле  $b_0$ , сдвинутое на  $\varphi = 90^\circ$  или  $\varphi = 270^\circ$  по фазе относительно  $\frac{\pi}{2}$  импульса (рисунок 30 (d)):

$$B_1(t) = 2b_0 \cos(\gamma_{As} B_{ext} t + \varphi). \quad (2.8)$$

Если перейти в систему координат, вращающуюся с частотой Ларморовой прецессии изотопа  $^{75}\text{As}$  ( $\omega_L^{\text{As}} = \gamma_{\text{As}} B_{\text{ext}}$ ), то поддерживающее поле будет иметь постоянную компоненту, направленную по или против направления развернутой средней намагниченности  $^{75}\text{As}$ . При постоянной амплитуде поддерживающего поля ( $b_0 = 21$  Гс) ядерная спиновая поляризация  $^{75}\text{As}$  не распадается в течение 3 секунд, хотя в отсутствии поддерживающего поля она распадается за примерно  $T_2^* = 200$  мкс. Это говорит о том, что ядерные спины изотопа  $^{75}\text{As}$  достигают термодинамического равновесия во ВСК, которое характеризуется спиновой температурой порядка нескольких мкК. Далее идет процесс адиабатического размагничивания: поддерживающееся поле выключалось до некоторой амплитуды  $b$  со скоростью  $10^4$  Гс/с.

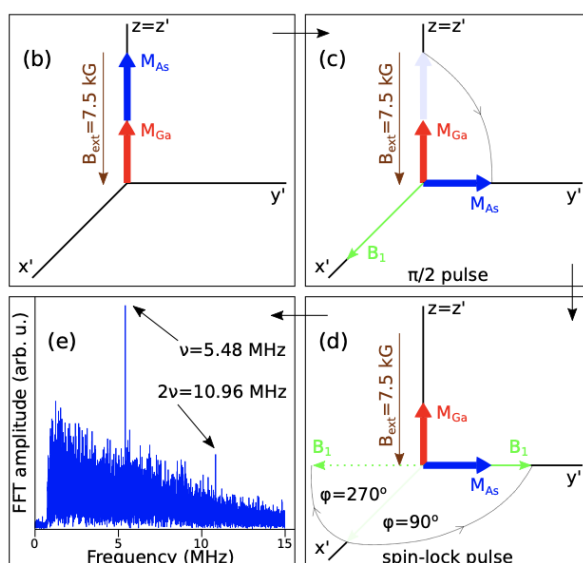


Рисунок 30 – Протокол экспериментов по адиабатическому размагничиванию ядерных спинов во вращающейся системе координат, состоящий из трех стадий: (b) накачка образца циркулярно-поляризованным светом во внешнем наклонном магнитном поле  $B_{\text{ext}} = 7.5$  кГс (коричневая стрелка) и создание ядерной намагниченности  $M_{\text{As}}$  (и  $M_{\text{Ga}}$  для случая, когда изотопы Ga не стирались); (c) приложение  $\frac{\pi}{2}$  импульса (зеленая стрелка), который разворачивал среднюю ядерную намагниченность изотопа  $^{75}\text{As}$  на  $90^\circ$  (синяя стрелка). Красная стрелка обозначает направление ядерной намагниченности, созданной изотопами Ga в случае, если ядерное поле изотопов Ga не стирается на первой стадии; (d) приложение поддерживающего импульса, сдвинутого по фазе на  $\varphi = 90^\circ$  или  $\varphi = 270^\circ$  относительно  $\frac{\pi}{2}$  импульса. Он имеет параллельное направление относительно развернутой ядерной намагниченности во ВСК; далее на третьей стадии шло выключение поддерживающего импульса, измерение сигнала спада свободной индукции и его преобразование Фурье, представленного на вставке (e).



На третьей стадии поддерживающее поле выключалось полностью и измерялся сигнал спада свободной индукции через осцилляции степени поляризации ФЛ со временем. Для этого сигнал ФЛ шел через четвертьволновую пластинку, призму Глана-Тейлора и детектировался диодом. Фурье преобразование полученного сигнала давало 1-ю и 2-ю гармоники частоты Ларморовой прецессии  $^{75}\text{As}$ :  $\nu$  и  $\nu_2$  (рисунок 30 (е)). Изменение степени поляризации ФЛ во времени происходило из-за динамического эффекта Ханле: средний электронный спин прецессировал в суммарном поле:  $B_{tot} = B_{ext} + B_{N,As}(t)$ , где  $B_{N,As}(t)$  – развернутое ядерное поле изотопа  $^{75}\text{As}$ , которое релаксировало за время измерения сигнала спада свободной индукции.

Амплитуды первой  $A_1$  и второй  $A_2$  гармоник пересчитывались в ядерные поля повернутого изотопа  $^{75}\text{As}$  для каждой величины поддерживающего поля  $b$ , в которое происходило адиабатическое размагничивание:

$$B_{\perp}(0) = 8B_{\parallel} \frac{A_2}{A_1} \tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta\right), \quad (2.7)$$

где  $B_{\perp}(0)$  – ядерное поле повернутого изотопа в первый момент времени измерения сигнала спада свободной индукции ( $B_{\perp}(t) = B_{\perp}(0)\exp(-\frac{t}{T_2^*})$ ,  $T_2^*$  – время распада ядерного поля в отсутствии поддерживающего импульса),  $B_{\parallel}$  – статическая часть магнитного поля, действующего на электронный спин (при отсутствии накачки изотопов галлия  $B_{\parallel} \sim B_{ext}$ ),  $\theta$  – угол наклона статического поля по отношению к оси роста образца.

Экспериментальная зависимость  $B_{\perp}(0)$  от  $b$  подгонялась формулой (2.9). Из подгонки можно извлечь величину локального поля  $B_L$ , которое в экспериментах во ВСК зависит от ориентации внешнего магнитного поля по отношению к кристаллическим осям.

$$B_{\perp}(0) = B_{\perp}(b_0) \frac{b}{b_0} \sqrt{\frac{b_0^2 + B_L^2}{b^2 + B_L^2}}. \quad (2.9)$$

### **Глава 3. Определение величины локального поля ядерных спинов в объемном образце *n*-GaAs**

В данной главе будут представлены оригинальные экспериментальные результаты по определению величины локального ядерного поля в объемном образце S1 *n*-GaAs с использованием установки по спектроскопии отогрева ядерных спинов, описанной в разделе 2. 1. Результаты данной главы опубликованы в статье [52].

#### **3.1 Использование установки по спектроскопии отогрева ядерных спинов для измерения локального поля**

Установка, созданная для измерения спектров поглощения охлажденной ЯСС переменным магнитным полем, которая описывалась в разделе 2. 1., может быть использована для определения такой фундаментальной характеристики ЯСС, как локальное поле. В обзоре литературы было отмечено, что величина локального поля ядерных спинов ограничивает величину минимальной ядерной спиновой температуры, которую возможно достичь с помощью оптического охлаждения ЯСС с последующим адиабатическим размагничиванием. Физическая суть локального поля объяснена в разделе 1. 2. 2.

Четырех-стадийный экспериментальный протокол должен быть изменен для экспериментов по измерению локального поля. Так, основное изменение заключается в том, что стадия с приложением переменного магнитного поля для данных экспериментов не нужна. Т. е. остается три стадии. Так, первой стадией является выдерживание ЯСС в темноте в течение 250 секунд. В отличие от спектроскопии отогрева, на данной стадии переменное магнитное поле не прикладывалось, но время первой стадии было увеличено до 250 секунд. Для определения локального поля не нужно ставить то количество экспериментов, которое было необходимо для получения спектров поглощения, поэтому время первой стадии можно было увеличить и в течение нее не прикладывать переменное поле.

На второй стадии шел этап оптического охлаждения в течение 10 секунд в продольном магнитном поле  $B_z = 100$  Гс с дальнейшим адиабатическим размагничиванием. Поскольку ЯСС не отогревалась переменным полем, времени охлаждения 10 секунд было достаточно для того, чтобы значительно понизить ядерную спиновую температуру. Так, величина ядерной спиновой температуры после адиабатического размагничивания была равна  $\theta_N^{ad} \approx 5.6 \cdot 10^{-4}$  К.

Третьей стадией шел сразу измерительный этап, аналогичный четвертому этапу в экспериментах по спектроскопии отогрева. Включалось поперечное магнитное поле  $B_x = 0 - (\pm)6$  Гс, электронные спины деполяризовывались в суммарном поле  $B_{tot} = B_x + B_N(t = 250)$  и затем в течение третьего этапа ядерное поле  $B_N$  релаксировало по закону  $B_N(t) = B_N(0)\exp(-\frac{t}{T_1})$ , где  $T_1$  – время спин-решеточной релаксации. Пример экспериментальной кривой, полученной по описанному протоколу для измерительного поля  $B_x = 5.15$  Гс, представлен на рисунке 31.

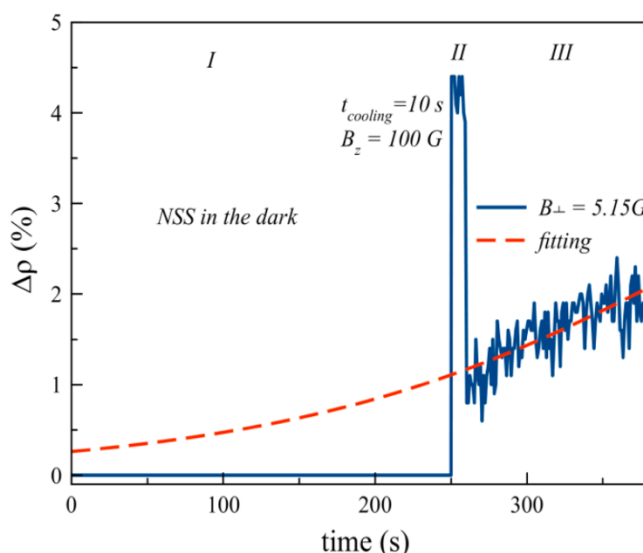


Рисунок 31 – Пример временной зависимости степени поляризации ФЛ, измеренной по трех-стадийному протоколу (синяя кривая): I) ЯСС в темноте в течении 250 с; II) оптическое охлаждение в продольном поле  $B_z = 100$  Гс в течение 10 с; III) Измерительный этап в поперечном поле  $B_x = 5.15$  Гс. Подгонка по формуле (2.10) обозначена красной штриховой линией.

### 3.2 Экспериментальные результаты

По описанному выше протоколу был получен набор кривых для различных измерительных полей  $B_x = 0 - (\pm)6$  Гс. Измерительный этап каждой кривой подгонялся формулой (рисунок 31. красная пунктирная кривая):

$$\rho(t) = \rho(0) \frac{B_{1/2}^2}{B_{1/2}^2 + (B_x + B_N(t))^2}, \quad (2.10)$$

где  $\rho(0) \sim 4\%$  – степень поляризации ФЛ на этапе оптического охлаждения,  $B_{1/2} = 10$  Гс – полуширина на полувысоте кривой Ханле,  $B_N(t) = B_N(0) \exp\left(-\frac{t}{T_1}\right)$ . Подгоночным параметром являлось ядерное поле в первый момент времени измерительного этапа  $B_N(0)$ .

Для каждой величины измерительного поля  $B_x$  было получено ядерное поле  $B_N(0)$  (рисунок 32, синие кружки).

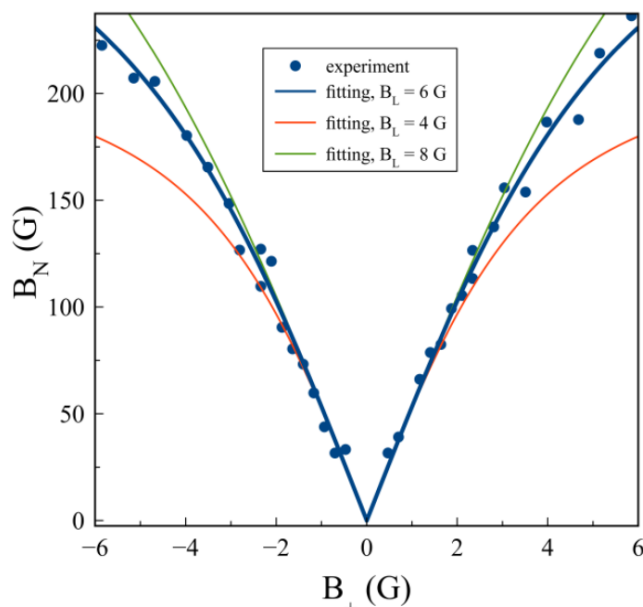


Рисунок 32 – Экспериментальная зависимость величины ядерного поля  $B_N(0)$  от измерительного поля  $B_x$  (синие кружки). Подгонка полученной зависимости формулой (2.11) с величиной локального поля в качестве подгоночного параметра:  $B_L = 4$  Гс (красная кривая),  $B_L = 6$  Гс (синяя кривая) и  $B_L = 8$  Гс (зеленая кривая). Наилучшей считается подгонка величиной локального поля  $B_L = 6$  Гс.

Далее, полученная зависимость  $B_N(0)(B_x)$  подгонялась формулой, связывающей ядерное поле и обратную ядерную спиновую температуру  $\beta(0)$  (красная, синяя и зеленая кривые на рисунке 32):

$$B_N(0) = \frac{b_N \hbar \gamma_N}{k_b} \frac{I(I+1)}{3} B_x \beta(0) \sqrt{\frac{B_L^2}{B_L^2 + B_x^2}}. \quad (2.11)$$

Подгоночным параметром была величина локального поля  $B_L$ . Наилучшая подгонка получается для  $B_L = (6 \pm 2)$  Гс. Ошибка определения локального поля лежит в пределах разброса экспериментальных точек.

### 3.3 Выводы главы

В данной главе на примере образца S1 приведен способ определения такой фундаментальной величины ядерной спиновой системы, как локальное поле. Для этого использовалась экспериментальная установка по спектроскопии отогрева с некоторыми изменениями в измерительном протоколе. Полученная величина локального поля  $B_L = (6 \pm 2)$  Гс отличается от величины, рассчитанной для объемного GaAs в работе D. Paget [12]:  $B_L^2 = (2.1 \pm 0.1) \text{ Гс}^2$ . Такое отличие может быть связано с наличием квадрупольного расщепления ядерных спиновых уровней энергии из-за небольшого напряжения в изучаемой структуре. Увеличение локального поля вследствие квадрупольных эффектов описано в разделе 1. 9. на примере образца в микрорезонаторе. В следующей главе будут более подробно изучены квадрупольные эффекты, в частности в образце S1, с помощью спектроскопии отогрева ядерных спинов.

## Глава 4. Спектры поглощения ядерных спинов объемных образцов *n*-GaAs

В данной главе представлены спектры поглощения ядерных спинов объемных образцов *n*-GaAs (S1-S3), измеренных с помощью методики спектроскопии отогрева, которая описана в разделе 2. 1. Для идентификации природы наблюдаемых пиков поглощения была разработана модель теоретического анализа полученных спектров поглощения для различных взаимных ориентаций статического и переменного магнитных полей. Такой анализ позволил выявить, что наблюдаемые пики поглощения в нулевом магнитном поле и их эволюция во внешних магнитных полях являются следствием квадрупольных взаимодействий в изучаемых образцах. Также он позволил определить тип и величину квадрупольных взаимодействий.

Результаты данной главы опубликованы в статьях [53, 54].

### 4.1 Спектры поглощения в нулевом магнитном поле

Первый спектр поглощения в нулевом магнитном поле был получен в работе [6]. Авторы использовали экспериментальный протокол, который был взят за основу для измерения спектров поглощения в четырех экспериментальных конфигурациях в данной диссертации и описан в разделе 2. 1. Так, в работе [6] изучался объемный кристалл *n*-GaAs с концентрацией доноров  $n_d \sim 10^{15} \text{ см}^{-3}$  при температуре решетки  $T = 4.2 \text{ К}$ . Для создания низкой ядерной спиновой температуры и сильной ядерной поляризации, авторы использовали метод оптического охлаждения с дальнейшим адиабатическим размагничиванием. Затем в темноте прикладывалось переменное магнитное поле в течение 30 секунд в нулевом магнитном поле, и далее включались накачка и измерительное поперечное магнитное поле. Стоит отметить, что данный протокол был создан этим же коллективом авторов и описан в более ранней работе [7], где отмечается, что была достигнута ядерная спиновая температура  $\theta_N \sim 10^{-6} \text{ К}$ . Спектр поглощения в нулевом магнитном поле, полученный в работе [6], приведен на рисунке 33 (а).

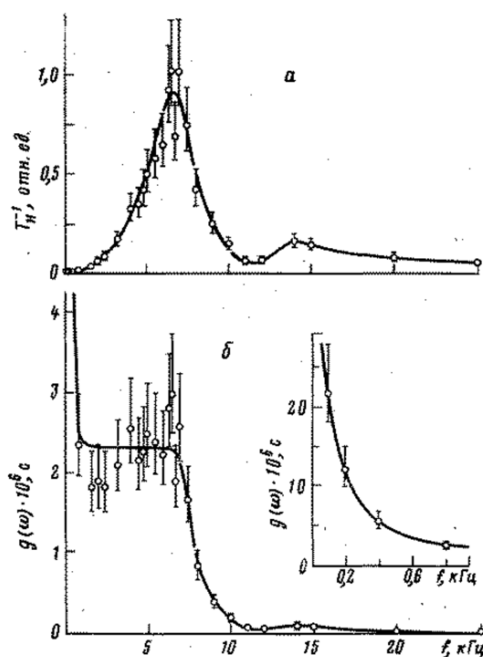


Рисунок 33 – Спектр поглощения (а) и спектр коррелятора (б) в нулевом магнитном поле охлажденной ЯСС образца *n*-GaAs, измеренный при температуре решетки  $T = 4.2$  К [6].

Спектр имеет два пика поглощения: на частотах 6 кГц и 14 кГц. Из классического ЯМР ожидалось, что в нулевом магнитном поле спектр поглощения должен состоять из одного пика на частоте Ларморовой прецессии ядерных спинов в локальных полях. Для GaAs это частота примерно равна 1.5 кГц. Но, как видно из рисунка 33, наблюдается совсем другая ситуация. Чтобы ответить на этот вопрос, авторы пересчитали спектр поглощения в спектр коррелятора (рисунок 33 (б)), поделив спектр поглощения на квадрат частоты, и получили рост низкочастотной части коррелятора (как связаны между собой скорость отогрева и коррелятор описано в конце главы 1 в разделе 1.10.), который они предположительно связали с ростом времени  $T_2$  и подходу ЯСС к поляронному состоянию (см. раздел 1.7.). Однако знак и величина спиновой температуры не соответствовали концепции ядерного спинового полярона, поэтому природа этих двух пиков поглощения не была установлена.

В данной диссертации спектры поглощения в нулевом магнитном поле были получены для трех образцов объемного *n*-GaAs (S1-S3). Они приведены на рисунке 34.

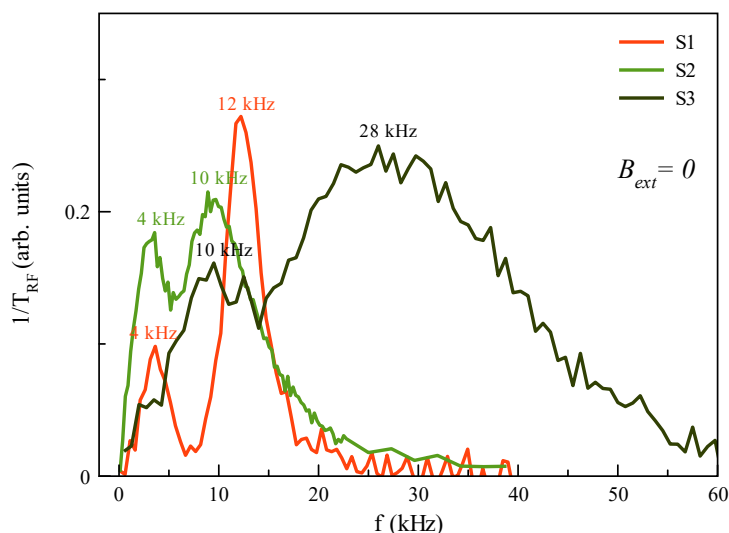


Рисунок 34 – Спектры поглощения в нулевом магнитном поле для образцов S1, S2 и S3.

Из рисунка 34 видно, что полученные спектры поглощения также состоят из двух пиков, а не из одного, как ожидалось для объемного кристалла GaAs. Причем частотное положение пиков поглощения для всех образцов разное и не имеет характерной зависимости от концентрации доноров. Для объемных кристаллов GaAs известно, что в них квадрупольные взаимодействия отсутствуют и все компоненты тензора ГЭП равны нулю. Однако если учесть, что в процессе измерений при  $T = 20\text{ K}$  температурные коэффициенты расширения держателя образца, клея, на который он был приклеен и самого образца разные, то это может вызвать неконтролируемую деформацию небольшой величины в образцах (по сравнению с деформацией, вызванной, к примеру, рассогласованием постоянных решеток в квантовых точках и квантовых ямах). Такая деформация приводит к квадрупольным расщеплениям уровней энергии ядерных спинов изотопов  $^{75}\text{As}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{71}\text{Ga}$ , которые в нулевом магнитном поле проявляются как два пика поглощения на частотах  $f > 1.5\text{ кГц}$ .

Такой вид деформации также является неконтролируемым в масштабе одного образца. Это доказывает тот экспериментальный факт, что спектр поглощения в нулевом магнитном поле меняется от точки к точке на поверхности образца (для данных экспериментов был использован образец S2). Так, меняя положение пятна накачки на образце, можно получить спектры поглощения, начиная от изначально ожидаемого (который имеет один пик на частоте  $f \sim 1.5\text{ кГц}$ ; спектр в точке В на рисунке 35 имеет вид, близкий к ожидаемому) и заканчивая спектром с двумя отдельными пиками (point С на рисунке 35. Спектр в этой точке представлен на рисунке 24 зеленым цветом).



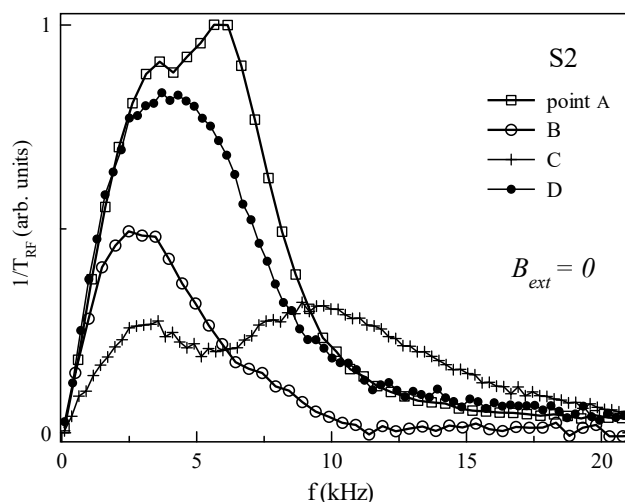


Рисунок 35 – Спектры поглощения в нулевом магнитном поле, измеренные в различных точках на поверхности образца S2.

Таким образом можно сделать вывод, что наблюдаемые пики поглощения в работе [6], скорее всего также объясняются неконтролируемой деформацией, приводящей к квадрупольным взаимодействиям. Также можно отметить, что наличие квадрупольных эффектов в образцах ранее детектировалось в основном по спутниковым линиям в магнитных полях  $B_{ext} \gg B_L$ . Однако спектроскопия отогрева позволяет измерять спектры поглощения в полях  $B_{ext} \sim B_L$ , в которых также проявляется квадрупольное взаимодействие.

#### 4.2 Анализ спектров поглощения для образца S2

Из рисунка 35 видно, что, меняя точку на образце S2, можно получить спектры поглощения различного вида. Для анализа спектров поглощения во внешних магнитных полях были выбраны точки на образце А и В. В точке В в нулевом магнитном поле спектр поглощения наиболее близок к ожидаемому виду (с одним пиком поглощения на частоте  $f \sim 2.5$  кГц) и квадрупольное взаимодействие в такой точке минимально. В точке А пик поглощения в нулевом поле немного сместился в высокочастотную часть и начинает расщепляться на два пика. В данной точке квадрупольное взаимодействие должно быть больше.

Для образца S2 спектры поглощения были измерены в двух экспериментальных конфигурациях: в одной продольной (когда внешнее поле было параллельно переменному:  $B_x \parallel B_x^1$ ) и в одной поперечной (когда внешнее поле перпендикулярно переменному:  $B_z \perp B_x^1$ ). При этом в продольной конфигурации (которая не используется в классическом ЯМР) для точек А и В были измерены спектры поглощения до полей  $B_x \leq 10$  Гс с увеличением амплитуды переменного поля  $B_1 = 0.1 - 1$  Гс, т. к. интенсивность поглощения резко падала с ростом поля  $B_x$ . Такие спектры поглощения приведены на рисунке 36. Для обеих точек на образце спектры поглощения одинаково спадают с ростом поля  $B_x$  и пики поглощения не расщепляются.

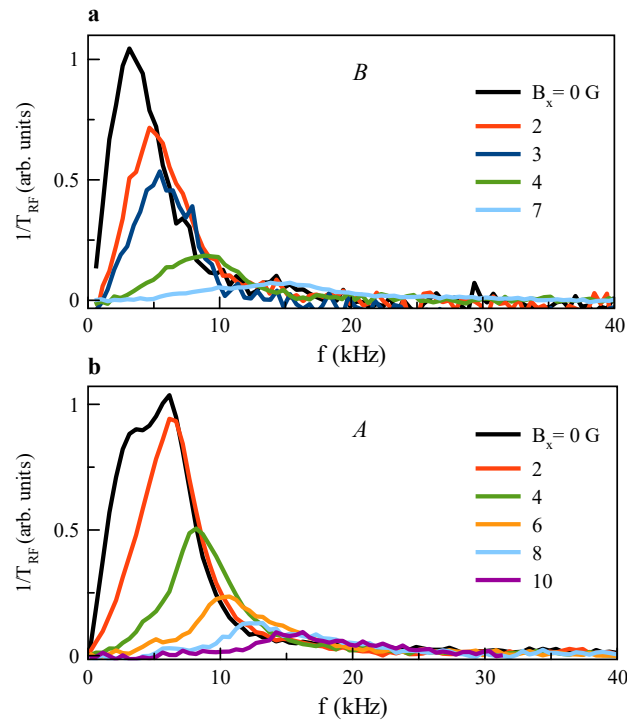


Рисунок 36 – Спектры поглощения для образца S2, измеренные в продольной экспериментальной геометрии, когда  $B_x \parallel B_x^1$ , для двух точек на образце: В (а) и А (б).

В поперечной конфигурации спектры поглощения для двух точек на образце были измерены до полей  $B_z \leq 100$  Гс. Вид спектров поглощения очень похож на спектры классического ЯМР: пик поглощения в нулевом поле с ростом поля  $B_z$  сдвигается в высокочастотный диапазон и в полях  $B_z > 10$  Гс расщепляется на три пика поглощения, которые соответствуют переходам между зеемановскими уровнями энергии для трех изотопов GaAs:  $^{75}\text{As}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{71}\text{Ga}$  (рисунок 37. Для наглядности приведены спектры в полях до 30 Гс).

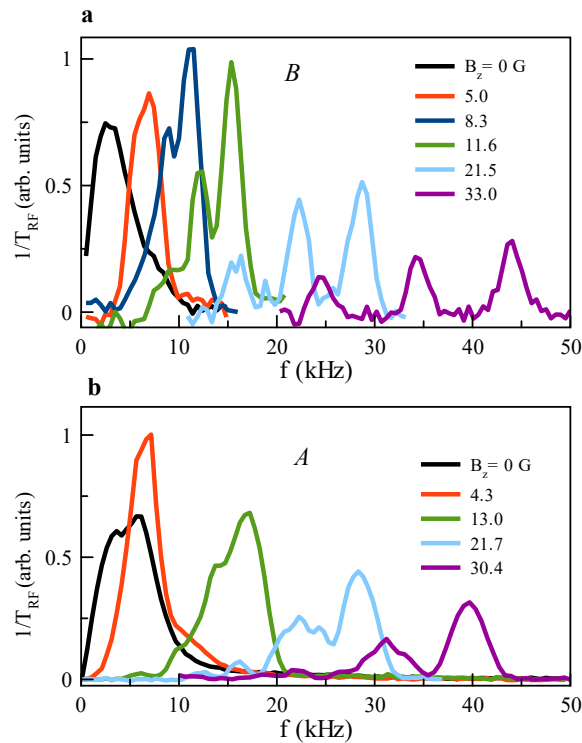


Рисунок 37 – Спектры поглощения для образца S2, измеренные в поперечной экспериментальной геометрии, когда  $B_Z \perp B_x^1$ , для двух точек на образце: В (а) и А (б).

Если посмотреть на рисунок 37, то можно заметить, что спектры поглощения для точки В уже в поле  $B_Z = 20$  Гс выходят на три отдельных узких зеемановских пика. В спектрах для точки А отдельные пики начинают появляться только в поле  $B_Z = 30$  Гс, при этом они уширены. Такое различие связано с тем, что в точке А квадрупольное взаимодействие больше, а уширение зеемановских линий – это появление квадрупольных спутников. Чтобы убедиться в этом, а также оценить величину квадрупольного взаимодействия, для точек А и В все наблюдаемые в эксперименте пики поглощения были подогнаны функциями Лоренца. Из подгонок были взяты положения максимумов лоренцианов и построены в зависимости от внешнего магнитного поля. Примеры подгонок для поля  $B_Z = 35$  Гс (точка А) и для поля  $B_Z = 100$  Гс (точка В) приведены на рисунке 38.

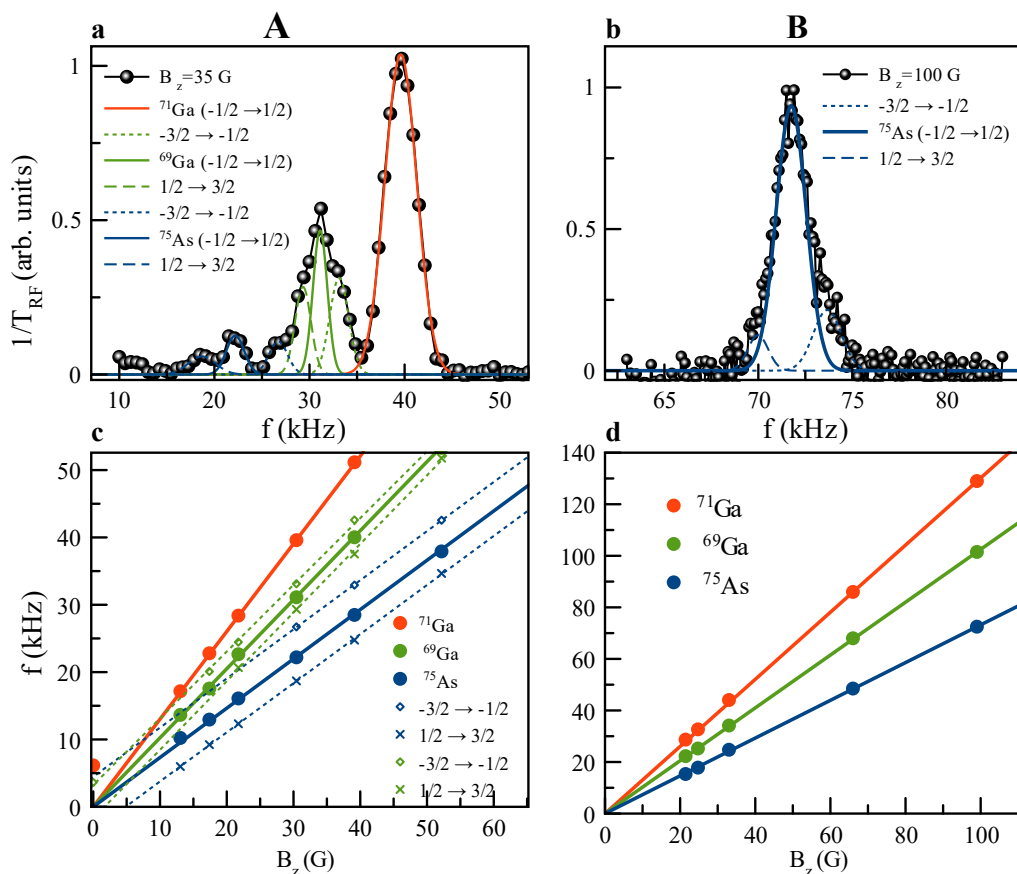


Рисунок 38 – (а) Спектр поглощения, измеренный в точке А в поле  $B_z = 35$  Гс (черные кружки). Пики поглощения, соответствующие центральным переходам  $-1/2 \rightarrow 1/2$  для изотопов  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$  подогнаны функциями Лоренца (красная, зеленая и синяя сплошные линии). Сателлитные пики поглощения для изотопов  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$  также подогнаны функциями Лоренца (зеленые и синие штриховые линии); (b) Спектр поглощения изотопа  $^{75}\text{As}$ , измеренный в точке В в поле  $B_z = 100$  Гс (черные кружки). Пик поглощения, соответствующий центральному переходу  $-1/2 \rightarrow 1/2$ , подогнан функцией Лоренца (синяя сплошная линия). Сателлитные пики также подогнаны функциями Лоренца (синие штриховые линии); (c) Частотные положения пиков поглощения в зависимости от величины статического магнитного поля  $B_z$  для точки А, соответствующие центральным переходам  $-1/2 \rightarrow 1/2$  для изотопов  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$  (красные, зеленые и синие кружки соответственно). Красные, зеленые и синие сплошные линии, идущие через кружки, соответствуют рассчитанным гиромагнитным отношениям для изотопов  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$ . Зеленые и синие кресты и полые кружки соответствуют частотным положениям сателлитных пиков для  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$ ; (d) Частотные положения пиков поглощения в зависимости от величины статического магнитного поля  $B_z$  для точки В, соответствующие центральным переходам  $-1/2 \rightarrow 1/2$  для изотопов  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$  (красные, зеленые и синие кружки соответственно). Красные, зеленые и синие сплошные линии, проходящие через кружки, соответствуют рассчитанным гиромагнитным отношениям для изотопов  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$ .

Во время подгонок спектров поглощения для точки А появление квадрупольных спутников у зеемановских линий было отчетливо видно с ростом поля  $B_z$ . При этом спутники наблюдались только для пиков поглощения изотопов  $^{75}\text{As}$  и  $^{69}\text{Ga}$ . Для изотопа  $^{71}\text{Ga}$  они не наблюдались из-за малости квадрупольной константы  $^{71}\text{Ga}$ . Четкий ход спутничных пиков поглощения, параллельных зеемановским пикам, приведен на рисунке 38 (с). Как было сказано в пункте 1. 2. 4., квадрупольное взаимодействие расщепляет и сдвигает зеемановские уровни энергии. Так, центральный переход ( $-\frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$ ) при наличии квадрупольных взаимодействий почти не меняется по частоте, а переходы  $-\frac{3}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$  и  $\frac{1}{2} \rightarrow \frac{3}{2}$  сдвигаются на  $\pm \omega_Q'$  соответственно (см. рисунок 4) и формируют квадрупольные спутничные линии.

При подгонке спектров поглощения для точки В с ростом поля  $B_z$  пик поглощения расщеплялся на три зеемановских пика без спутников. Чтобы проверить, есть ли в данной точке на образце квадрупольное взаимодействие, с маленьким шагом по частоте был промерен пик поглощения изотопа с наибольшей константой квадрупольного взаимодействия -  $^{75}\text{As}$  во внешнем магнитном поле  $B_z = 100$  Гс (рисунок 38 (b)). Отдельных спутничных пиков, как в точке А, не было получено. Однако пик поглощения имел небольшое уширение, которое можно связать с наличием слабого квадрупольного взаимодействия. Так, пик можно подогнать тремя функциями Лоренца, соответствующие центральному переходу  $-\frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$  (сплошная синяя линия на рисунке 38 (с)) и зарождающимся спутникам, которые соответствуют переходам  $-\frac{3}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$  и  $\frac{1}{2} \rightarrow \frac{3}{2}$  (штриховые синие линии на рисунке 38 (с)).

По частотному сдвигу спутников можно оценить величину квадрупольного взаимодействия в точках А и В, если предположить, что источником квадрупольного взаимодействия является одноосная деформация. Так, при таком виде деформации, частотный сдвиг  $\Delta f$  связан с компонентой тензора упругой деформации  $\varepsilon_b$  через формулу (остальные компоненты тензора упругой деформации в данном случае равны нулю):

$$\varepsilon_b = \frac{\Delta f 2h}{e Q_i S_{11}^i}, \quad (4.1)$$

где  $S_{11}^i$  – компонента градиентно-эластического тензора четвертого ранга для  $i$ -го изотопа (величины данной компоненты тензора для изотопов GaAs приведены в таблице 3),  $Q_i$  – квадрупольная константа для  $i$ -го изотопа (величины этих констант для изотопов GaAs приведены в таблице 2).

Таким образом, для точки В, во внешнем магнитном поле  $B_z = 35$  Гс (рисунок 38 (a)) для изотопов  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$  в спектре поглощения частотные сдвиги равны  $\Delta f = 2$  кГц и 4 кГц

соответственно. Подставив их в формулу (4.1), а также  $S_{11}^i$  и  $Q_i$  для соответствующих изотопов, получается, что компонента упругой деформации, отвечающая за одноосное давление, равна:  $\varepsilon_b = 4.3 * 10^{-5}$  (такая деформация считается очень незначительной, т. к. образцы, в которых изучают влияние квадрупольных эффектов на различные свойства ЯСС, например квантовые точки, имеют расщепления в десять раз больше:  $\Delta f \sim 30$  кГц и, соответственно, в десять раз более сильную деформацию, которую легко идентифицировать методом ядерного квадрупольного резонанса, либо методом ОДЯМР в больших внешних магнитных полях). Как было сказано выше, наличие квадрупольного взаимодействия в объемном образце GaAs в данном случае возможно из-за разниц в коэффициентах температурного расширения (КТР) медного держателя и GaAs. Так, для сапфира  $КТР = 4.85 * 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ , а для GaAs  $КТР = 4.5 * 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  при температуре 300 К. Если считать, что КТР для этих кристаллов не меняется при понижении температуры с 300 К до 20 К, то относительное изменение длин держателя и образца при охлаждении  $\Delta L = \frac{\Delta l(\text{сапфир})}{l} - \frac{\Delta l(\text{GaAs})}{l} = (300 - 20) * \{КТР(\text{сапфир}) - КТР(\text{GaAs})\} \approx 10^{-4}$ . Такое изменение длины при охлаждении сопоставимо с величиной компоненты тензора упругой деформации  $\varepsilon_b = 4.3 * 10^{-5}$ , полученной из экспериментов по спектрам поглощения.

Для точки В на образце величина частотного сдвига для изотопа  $^{75}\text{As}$  в два раза меньше, чем для точки А и составляет  $\Delta f = 2$  кГц (рисунок 38 (b)). Такому сдвигу соответствует в два раза меньшая по величине компонента тензора упругой деформации  $\varepsilon_b = 2.1 * 10^{-5}$ . Однако такая величина допустима, т. к. она лежит в пределах оценки изменения длин держателя и образца при охлаждении до 20 К.

Измерения спектров поглощения и предположение насчет типа квадрупольного взаимодействия в образце S2 являлись первым важным шагом на пути к созданию спектроскопии отогрева ядерных спинов, в которой в дальнейшем использовались четыре экспериментальные геометрии, а также специально созданная модель для анализа полученных спектров поглощения для точного определения типа и величины квадрупольного взаимодействия в исследуемом образце. Описанный в данном разделе приближенный анализ и приведенные спектры поглощения говорят об эффективности методики отогрева оптически охлажденной ЯСС переменным полем в нулевом и слабых статических магнитных полях для определения даже незначительных (на порядок меньше, чем обычно изучаются) величин квадрупольных взаимодействий в образце.

Развитие метода спектроскопии отогрева ядерных спинов будет приведено в следующем разделе на примере образца S1.

### 4.3 Анализ спектров поглощения для образца S1

Полная методика спектроскопии отогрева ядерных спинов предполагает для дальнейшего теоретического анализа использовать спектры поглощения в четырех экспериментальных конфигурациях (см. схематическое изображение геометрии экспериментов на рисунке 26). Каждый спектр поглощения (как и в предыдущем разделе) был получен по четырех-стадийному экспериментальному протоколу, описанному в разделе 2. 1. Ниже будут представлены экспериментальные спектры поглощения в четырех конфигурациях на примере образца S1, их теоретический анализ и, как результат, виды и величины вкладов в квадрупольное взаимодействие. Таким образом, на образце S1 будет продемонстрирована полная и рабочая на момент написания диссертации методика спектроскопии отогрева ядерных спинов. Стоит отметить, что она развивалась и отлаживалась с нуля в течение всего срока обучения в аспирантуре.

#### 4.3.1 Спектр поглощения в нулевом магнитном поле

Опираясь на опыт, полученный при изучении образца S2, для образца S1 также были измерены спектры поглощения в нулевом магнитном поле для различных точек на образце (point 1 – point 4, рисунок 39). Но в отличие от образца S2, независимо от точки на образце, спектры поглощения имели всегда два пика: на частотах  $f_1 = (4-7)$  кГц и  $f_2 = (12-22)$  кГц. Наблюдаемые пики поглощения в нулевом магнитном поле связаны с квадрупольным взаимодействием в образце. При этом пик  $f_1$  связан с квадрупольным взаимодействием ядер изотопов  $^{71}\text{Ga}$  и  $^{69}\text{Ga}$ , т. к. они имеют близкие по величине квадрупольные константы, а пик  $f_2$  связан с изотопом  $^{75}\text{As}$ . Эволюция этих пиков поглощения с ростом внешнего статического магнитного поля для точки point 2 в четырех экспериментальных конфигурациях будет приведена в следующем разделе.

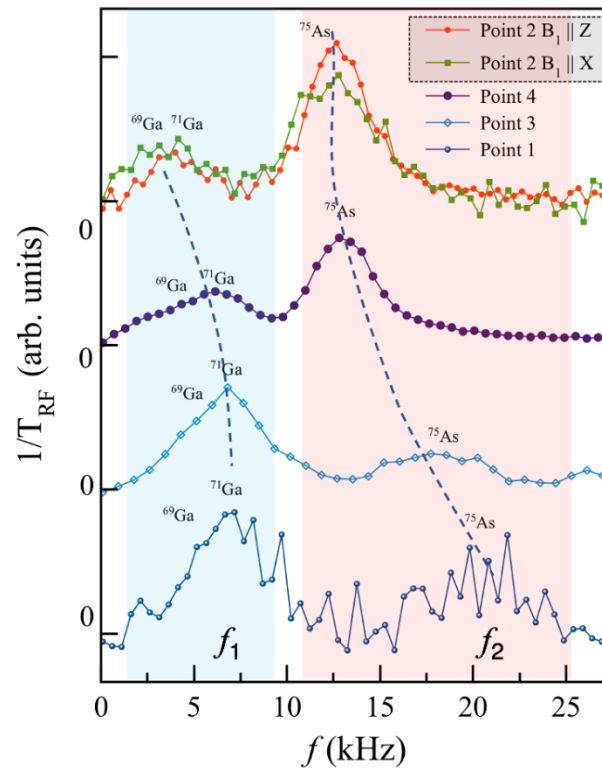


Рисунок 39 – Спектры поглощения в нулевом магнитном поле для образца S1 в четырех различных точках на образце, полученные по четырех-стадийному экспериментальному протоколу. Спектры содержат два пика поглощения: на частотах  $f_1 = (4-7)$  кГц и  $f_2 = (12-22)$  кГц. Зависимости частотного положения каждого из пиков от точки на образце приведены штриховыми линиями. Для сравнения со спектрами поглощения от других образцов, спектр для образца S1 в точке point 2 приведен на рисунке 34 красным цветом.

#### 4.3.2 Спектры поглощения в четырех экспериментальных конфигурациях. Общий вид

Спектры поглощения для образца S1 были получены в двух продольных и в двух поперечных экспериментальных геометриях. Спектры в продольных геометриях (когда внешнее статическое поле было параллельно переменному:  $B_x || B_x^1$  и  $B_z || B_z^1$ ) изображены на рисунке 40 в виде водопадов. Спектры были измерены до величин статических магнитных полей  $B_{x,z} < 18$  Гс, т. к. с ростом статического поля поглощение быстро спадало. Это хорошо видно на рисунке 40: у спектров в полях  $B_{x,z} \sim 10$  Гс интегральное поглощение очень мало по сравнению с



остальными спектрами. Далее спектры поглощения будут нормироваться на интегральное поглощения, чтобы все наблюдаемые пики были отчетливо видны.

Эволюция двух пиков поглощения с ростом статического магнитного поля отличается для двух продольных конфигураций. В случае  $B_x || B_x^1$  два пика сначала вместе съезжают в высокочастотную область и уширяются, а затем в поле  $B_x = 3.9$  Гс высокочастотный пик продолжает съезжать в сторону высоких частот, а низкочастотный пик, наоборот, начинает сдвигаться в низкие частоты (рисунок 40 (a)). В конфигурации, когда  $B_z || B_z^1$ , наблюдается иная эволюция: вначале два пика сдвигаются в высокочастотную часть, а затем, начиная с поля  $B_z = 6.1$  Гс, они сливаются в один пик, который продолжает съезжать в область высоких частот (рисунок 40 (b)). Такое различие может быть вызвано тем, что переменное магнитное поле, приложенное в разных направлениях, индуцирует разные типы переходов между квадрупольными уровнями энергий ядерных спинов.

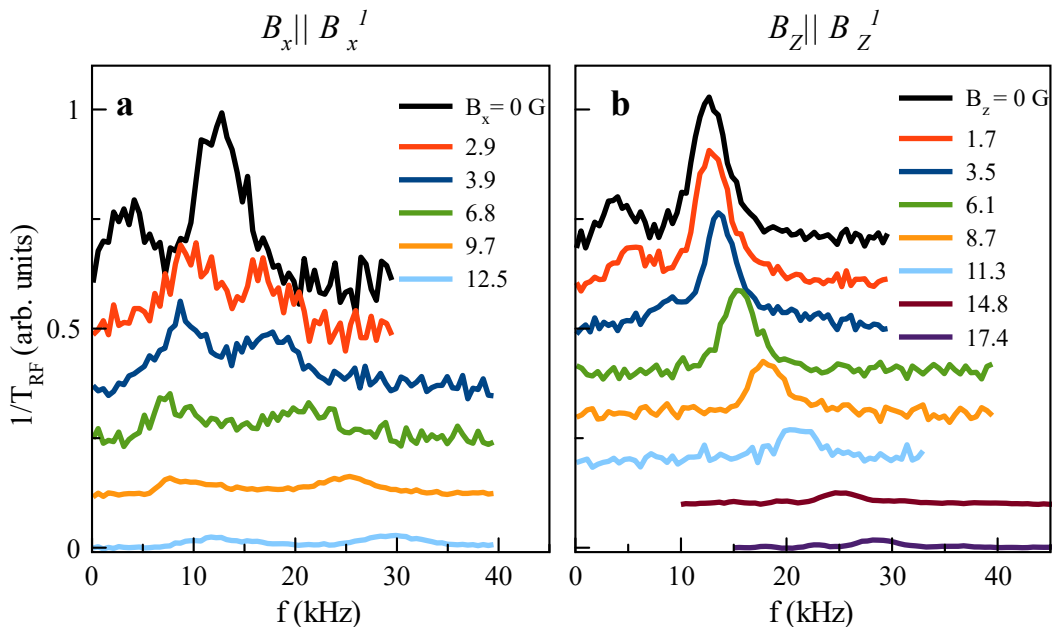


Рисунок 40 – Ненормированные спектры поглощения для образца S1, измеренные в двух продольных экспериментальных конфигурациях: (a)  $B_x || B_x^1$  и (b)  $B_z || B_z^1$ .

Спектры поглощения в двух поперечных конфигурациях (когда  $B_z \perp B_x^1$  и  $B_x \perp B_z^1$ ) были измерены до величин статических магнитных полей  $B_{z,x} < 90$  Гс и приведены в виде водопадов на рисунке 41. Ход двух пиков поглощения с ростом магнитного поля для двух поперечных конфигураций имеет общую тенденцию: с ростом поля пики поглощения выходят на три пика, соответствующие переходам между зеемановскими уровнями энергий трех изотопов GaAs:  $^{75}\text{As}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{71}\text{Ga}$ , что соответствует классическим экспериментам по ЯМР. Однако в геометрии  $B_z \perp B_x^1$ , уже в полях  $B_z > 10$  Гс, начинают появляться три узких зеемановских пика. При этом в геометрии  $B_x \perp B_z^1$  расщепление на зеемановские пики начинается гораздо позже (примерно в

полях  $B_x > 30$  Гс), и пики поглощения являются довольно широкими. Как будет показано ниже, такое уширение связано с появлением квадрупольных спутников.

Эволюция пиков поглощения в объемном образце  $n$ -GaAs, который имеет неконтролируемую деформацию, вызывающую квадрупольные взаимодействия, в каждой из четырех экспериментальных геометрий различна. Это говорит о том, что каждая из геометрий несет определенную информацию и является важной для точной идентификации вида и величины квадрупольных взаимодействий в образце. В данном разделе приведен только общий вид спектров поглощения.

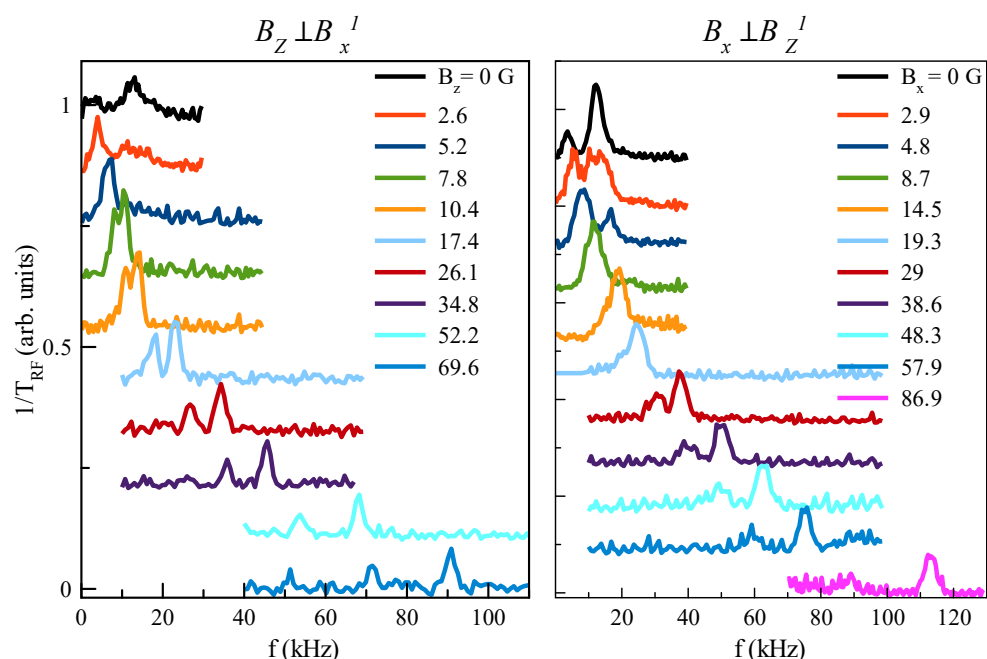


Рисунок 41 – Ненормированные спектры поглощения для образца S1, измеренные в двух поперечных экспериментальных конфигурациях: (a)  $B_z \perp B_x^1$  и (b)  $B_x \perp B_z^1$ .

### 4.3.3 Теоретический анализ спектров поглощения, измеренных во внешних магнитных полях для образца S1

Поведение пиков поглощения во внешнем магнитном поле (эволюция частотных положений пиков поглощения с ростом поля) определяется квадрупольной и зеемановской энергиями ядерных спинов трех изотопов GaAs. Для каждого из трех изотопов ожидается увидеть четыре типа переходов между ядерными уровнями энергий для поперечных геометрий (тёмно-зелёные и светло-голубые стрелочки на рисунке 42 (a), (b) соответственно), и два типа переходов для продольных геометрий (светло-зеленые и синие стрелочки на рисунке 42 (a), (b) соответственно).

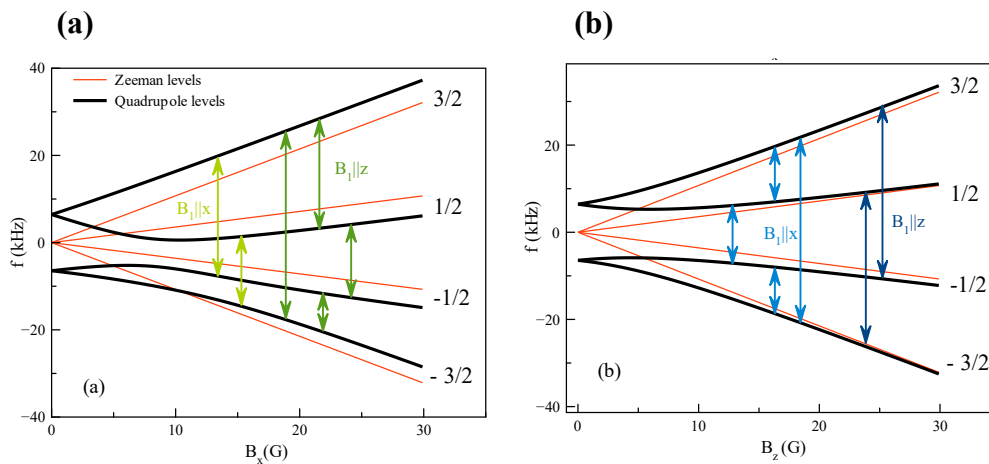


Рисунок 42 – Зеемановские (красные линии) и квадрупольные + зеемановские (черные линии) уровни энергии ядерных спинов изотопа  $^{75}\text{As}$  во внешних полях (a)  $B_x$  и (b)  $B_z$ . Стрелочками показаны разрешенные типы переходов для четырех экспериментальных геометрий: по четыре типа переходов для каждой поперечной геометрии (тёмно-зелёные и светло-голубые стрелочки) и по два типа перехода для каждой продольной геометрии (светло-зеленые и синие стрелочки).

При этом из рисунка 42 (a) видно, что сателлиты ожидается увидеть только в поперечной геометрии, когда  $B_x \perp B_Z^1$  (с ростом поля красные квадрупольные линии не стремятся к черным зеемановским, а идут параллельно им, формируя квадрупольные сателлиты). В экспериментах это проявляется вначале как уширение пика поглощения, а затем как расщепление на зеемановские пики, сопровождаемые сателлитами. Примеры спектров поглощения в данной геометрии для трех величин внешних статических магнитных полей  $B_x = 8.7, 19.3$  и  $29$  Гс приведены на рисунке 43 синими точками. Спектры были подогнаны функциями Лоренца,

которые описывают все наблюдаемые пики поглощения (зеленые линии на рисунке 43). Аналогичные подгонки были сделаны для всего набора экспериментальных спектров поглощения. Из таких подгонок были взяты частотные положения пиков поглощения. Это будет необходимо для дальнейшей иллюстрации совпадения теории и эксперимента (см. colormap).

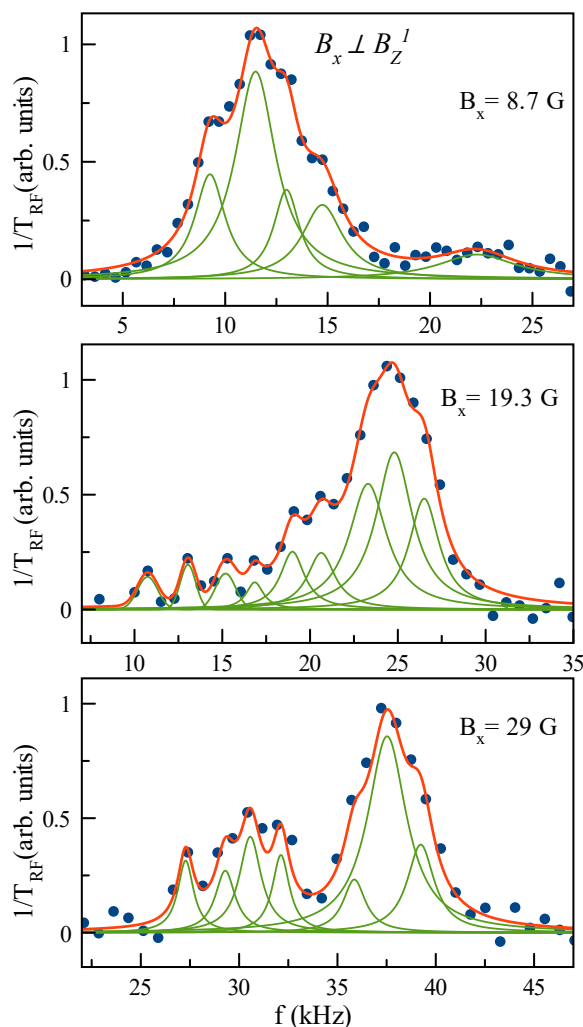


Рисунок 43 – Примеры спектров поглощения в поперечной геометрии  $B_x \perp B_z^1$  для полей  $B_x = 8.7, 19.3$  и  $29$  Гс (синие точки). Подгонки наблюдаемых пиков поглощения функциями Лоренца (зеленые линии). Красными линиями изображены суммарные подгоночные функции.

Для того, чтобы описать полученные спектры поглощения, было использовано квантово-механическое описание квадрупольных энергии ядерного спина в присутствии внешнего статического магнитного поля, а также переменного поля в качестве возмущения.

Квадрупольное взаимодействие ядерного спина  $I$ , имеющего квадрупольный момент  $eQ^i$ , где  $i$  – номер изотопа, для кристаллических осей  $Z \parallel 001, X \parallel 100, Y \parallel 010$ , описывается Гамильтонианом:

$$\hat{H}_Q = \frac{eQ^i}{6I(2I-1)} \sum_{j,k} V_{jk} \left\{ \frac{3}{2} (\hat{I}_j \hat{I}_k + \hat{I}_k \hat{I}_j) - \delta_{jk} \hat{I}^2 \right\}, \quad (4.2)$$

где  $V_{jk} = \sum_{lm} S_{jklm} \varepsilon_{lm} + \sum_i R_{ijk} F_i$  – тензор ГЭП на месте расположения ядра.

Известно, что при отсутствии внешних воздействий на кристалл кубической симметрии все компоненты тензора ГЭП  $V_{jk} = 0$ . ГЭП может быть вызван некоторой деформацией решетки, а также однородным внутренним электрическим полем. Целью дальнейшего теоретического анализа является выяснить причину возникновения ГЭП.

Т. к. изучаемый образец представляет собой тонкую пластинку (ось  $Z$  – это оси роста образца), то можно считать, что сдвиговая деформация в плоскостях  $(x, z)$  и  $(y, z)$  будет равна нулю. Если предполагается, что есть внутреннее электрическое поле, то оно скорее всего будет вызвано градиентом легирования либо поверхностными зарядами и направлено вдоль оси  $Z$ . Исходя из этих предположений, запишем Гамильтониан квадрупольного взаимодействия в виде:

$$\hat{H}_{Qi} = \frac{E_{QZ}^i}{2} \left( \hat{I}_z^2 - \frac{I(I+1)}{3} \right) + \frac{E_{QR}^i}{4\sqrt{3}} (\hat{I}_+^2 + \hat{I}_-^2) + i \frac{E_{QI}^i}{4\sqrt{3}} (\hat{I}_+^2 - \hat{I}_-^2). \quad (4.3)$$

Данный Гамильтониан характеризуется девятью энергетическими параметрами, по три для каждого изотопа:  $E_{QZ}^i$ ,  $E_{QR}^i$  и  $E_{QI}^i$ , где  $i$  – номер изотопа.

Параметр  $E_{QZ}^i$  отвечает за наличие одноосной деформации в образце вдоль оси  $Z$ :

$$E_{QZ}^i = \frac{9eQ^i S_{11}^i}{4I(I-1)} \left( \varepsilon_{zz} - \frac{\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}}{3} \right), \quad (4.4)$$

где  $S_{11}^i$  – компонента градиенто-эластического тензора для  $i$ -го изотопа,  $\varepsilon_{zz}$ ,  $\varepsilon_{yy}$  и  $\varepsilon_{xx}$  – диагональные компоненты тензора упругой деформации.

Параметр  $E_{QR}^i$  отвечает за одноосную деформацию вдоль осей  $x$  и  $y$ :

$$E_{QR}^i = \frac{3\sqrt{3}eQ^i S_{11}^i}{4I(2I-1)} (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}). \quad (4.5)$$

Последний параметр  $E_{QI}^i$  одновременно отвечает и за сдвиговую деформацию в плоскости  $(x, y)$ , и за внутреннее электрическое поле вдоль оси роста:

$$E_{QI}^i = \frac{\sqrt{3}eQ^i S_{44}^i}{2I(2I-1)} (\varepsilon_{xy} + \varepsilon_{yx}) + \frac{\sqrt{3}eQ^i R_{14}^i}{I(2I-1)} F, \quad (4.6)$$

где  $S_{44}^i$  - компонента градиенто-эластического тензора для  $i$ -го изотопа,  $\varepsilon_{xy}$  – недиагональная компонента тензора упругой деформации,  $R_{14}^i$  – компонента пьезоэлектрического тензора для  $i$ -го изотопа.

Виды всех упомянутых тензоров описаны в разделе 1. 2. 6., а величины ненулевых компонент для трех изотопов GaAs приведены в таблице 3. Как было отмечено в главе 1, величины  $R_{14}^i$  были взяты из [24] и пересчитаны с учетом новых квадрупольных констант из [22].

Можно предположить, что напряжение, приложенное к образцу, состоит из сжимающего давления  $p_1$ , приложенного в плоскости (x, y) ( $x \parallel [110]$ ,  $y \parallel [1\bar{1}0]$ ) под некоторым углом  $\zeta$  относительно оси x, и “растягивающего” давления  $p_2$  в ортогональном направлении. Тогда все ненулевые компоненты тензора упругой деформации  $\varepsilon_{lm}$  в случае кристалла кубической симметрии могут быть выражены через эти три параметра с использованием тензора жесткости  $C_{iklm}$ :

$$\varepsilon_{xx} = \frac{(C_{11}+2C_{12})(p_1 \cos^2 \zeta + p_2 \sin^2 \zeta) - C_{12}(p_1+p_2)}{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}, \quad (4.7)$$

$$\varepsilon_{yy} = \frac{(C_{11}+2C_{12})(p_1 \sin^2 \zeta + p_2 \cos^2 \zeta) - C_{12}(p_1+p_2)}{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}, \quad (4.8)$$

$$\varepsilon_{zz} = -\frac{C_{12}(p_1+p_2)}{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}, \quad (4.9)$$

$$\varepsilon_{xy} = \varepsilon_{yx} = (p_1 - p_2) \frac{\cos \zeta \sin \zeta}{C_{44}}. \quad (4.10)$$

Величины ненулевых компонент тензора жесткости  $C_{iklm}$  для кристалла кубической симметрии приведены в таблице 3.

Выражения для параметров  $E_{QZ}^i$ ,  $E_{QR}^i$  и  $E_{QI}^i$  можно переписать в терминах давлений  $p_1$  и  $p_2$  и угла  $\zeta$ , под которым направлены эти давления в плоскости (x, y):

$$E_{QZ}^i = -\frac{3eQ^i S_{11}^i}{4I(2I-1)} \frac{1}{C_{11}-C_{12}} (p_1 + p_2), \quad (4.11)$$

$$E_{QR}^i = \frac{3\sqrt{3}eQ^i S_{11}^i}{4I(2I-1)} \frac{\cos(2\zeta)}{C_{11}-C_{12}} (p_1 - p_2), \quad (4.12)$$

$$E_{QI}^i = \frac{\sqrt{3}eQ^i S_{44}^i}{2I(2I-1)} \frac{\sin(2\zeta)}{C_{44}} (p_1 - p_2) + \frac{\sqrt{3}eQ^i R_{14}^i}{I(2I-1)} F. \quad (4.13)$$

Полная энергия ЯСС во внешнем магнитном поле задается суммой квадрупольного и Зеемановского Гамильтонианов для каждого из изотопов:

$$\hat{H}_i = \hat{H}_{Qi} + \gamma_i h(\hat{I} \cdot B). \quad (4.14)$$

Уровни энергии каждого изотопа определяются собственными значениями Гамильтониана  $\hat{H}_i$ . Собственные функции  $|\Psi_m\rangle$  Гамильтониана  $\hat{H}_i$  являются суперпозициями состояний с проекциями угловых моментов  $|\pm 1/2\rangle, |\pm 3/2\rangle$ , которые зависят от взаимных ориентаций направления давлений и кристаллографических осей. Их можно найти с помощью численной диагонализации Гамильтониана  $\hat{H}_i$ . Переменное магнитное поле индуцирует переходы между этими состояниями в случае, если частота переменного поля совпадает с разницей энергий между уровнями энергии ядерных спинов. Вероятность перехода между уровнями энергий  $E_k$  и  $E_l$  для  $i$ -го изотопа  $P_{kl}^i$  пропорциональна квадрату матричного элемента Гамильтониана  $\hat{H}_1$ , который описывает взаимодействие ЯСС с переменным магнитным полем:  $P_{kl}^i \sim \langle \Psi_k | \hat{H}_1 | \Psi_l \rangle^2$ . Тогда скорость отогрева ЯСС  $\frac{1}{T_{RF}}$  можно записать через вероятность перехода  $P_{kl}^i$ :

$$\frac{1}{T_{RF}} = \frac{A^i P_{kl}^i |E_k^i - E_l^i|^2}{\sum_i A^i \sum_{j=1}^4 |E_j|^2}, \quad (4.15)$$

где  $A^i$  – изотопная фракция ( $A(^{71}\text{Ga}) = 0.2$ ,  $A(^{69}\text{Ga}) = 0.3$  и  $A(^{75}\text{As}) = 0.5$ ).

Данный расчет собственных значений и собственных функций ядерного спина позволяет описать весь ансамбль из 35 экспериментальных спектров поглощения. Для этого из полученных собственных значений и собственных функций высчитывались частоты всевозможных переходов и их вероятности для трех изотопов и четырех экспериментальных геометрий. Далее формула (4.15) для каждого из 35-и экспериментальных случаев сворачивалась с эмпирической функцией Гаусса с полушириной на полувысоте  $\delta f = 1.5$  кГц. Для подгонки расчетных спектров поглощения к экспериментальным были использованы величины энергетических параметров  $E_{QZ}^i, E_{QR}^i$  и  $E_{QI}^i$ . Подгонка происходила по методу наименьших квадратов: от итерации к итерации менялись величины подгоночных параметров до тех пор, пока теория не совпадет с экспериментом. Экспериментальные (цветные точки) и теоретические (цветные линии) кривые приведены на рисунке 44 для всего ансамбля спектров. Каждый экспериментальный и теоретический спектр был нормирован на интегральное поглощение, чтобы в больших полях в продольных геометриях были лучше видны пики поглощения.

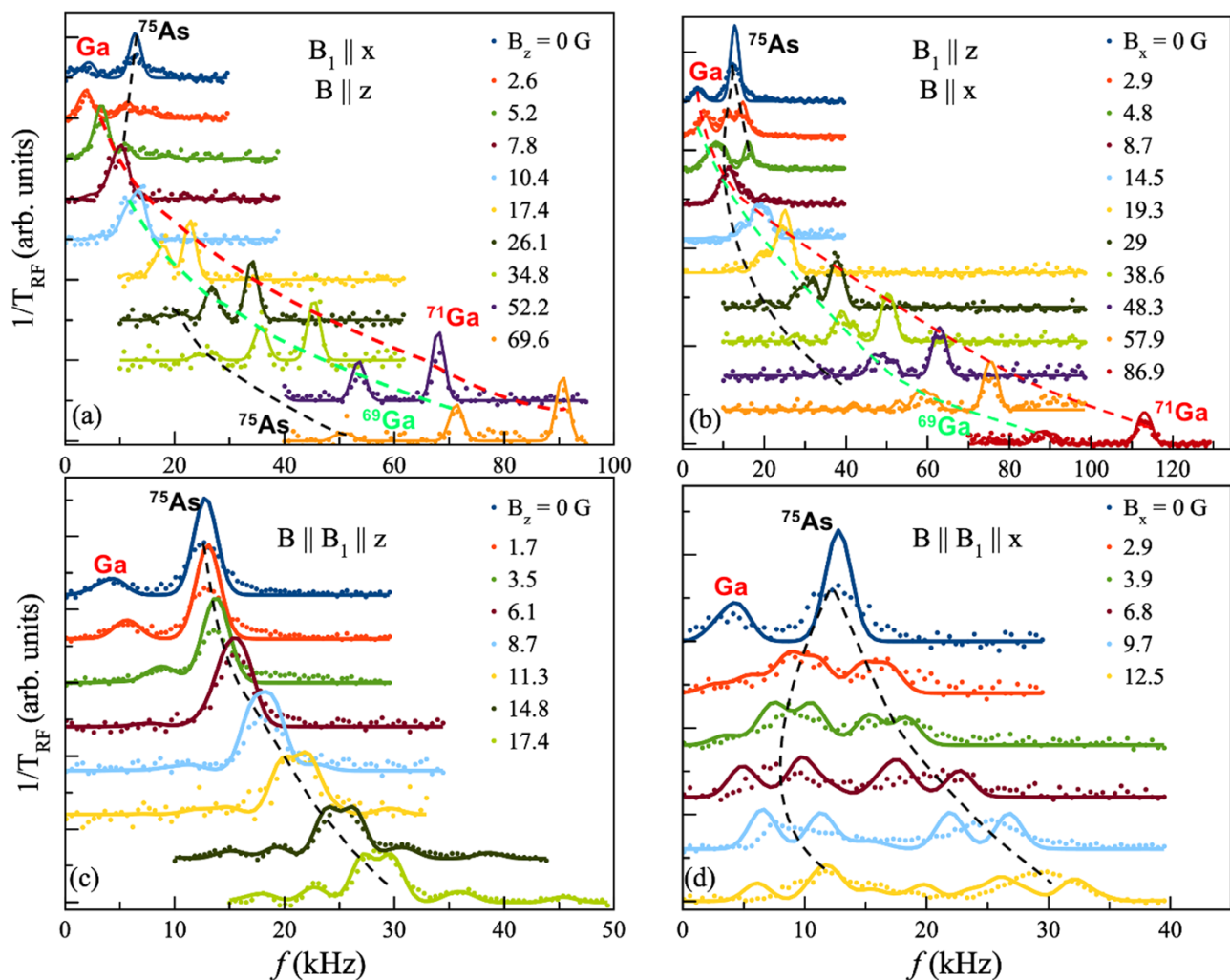


Рисунок 44 – Экспериментальные (цветные точки) и теоретические (цветные линии) спектры поглощения для двух поперечных (a), (b) и двух продольных (c), (d) конфигураций. Все спектры нормированы на интегральное поглощение. Черными, красными и зелеными пунктирными линиями показаны эволюции пиков поглощения для изотопов  $^{75}\text{As}$ ,  $^{71}\text{Ga}$  и  $^{69}\text{Ga}$  соответственно.

В качестве варианта представления теоретически рассчитанных спектров, были построены трехмерные рисунки (colormaps, рисунок 45) для каждой из четырех конфигураций эксперимента, на которых цветом изображена интенсивность расчетных спектров поглощения, а белыми кружками - положение экспериментальных пиков. При этом размер кружков определяется интегральным поглощением каждого экспериментального пика. Так, colormaps наглядно показывает согласие теории и эксперимента. Также наблюдаемые в эксперименте сателлиты в поперечной геометрии  $B_x \perp B_z^1$  (см. примеры подгонок на рисунке 43) хорошо описываются теорией (рисунок 45 (b)). Сравнение интегральных интенсивностей поглощения расчетных (рисунок 45 (c), (f) линии) и экспериментальных (рисунок 45 (c), (f) кружки) спектров поглощения показывает хорошее согласие.



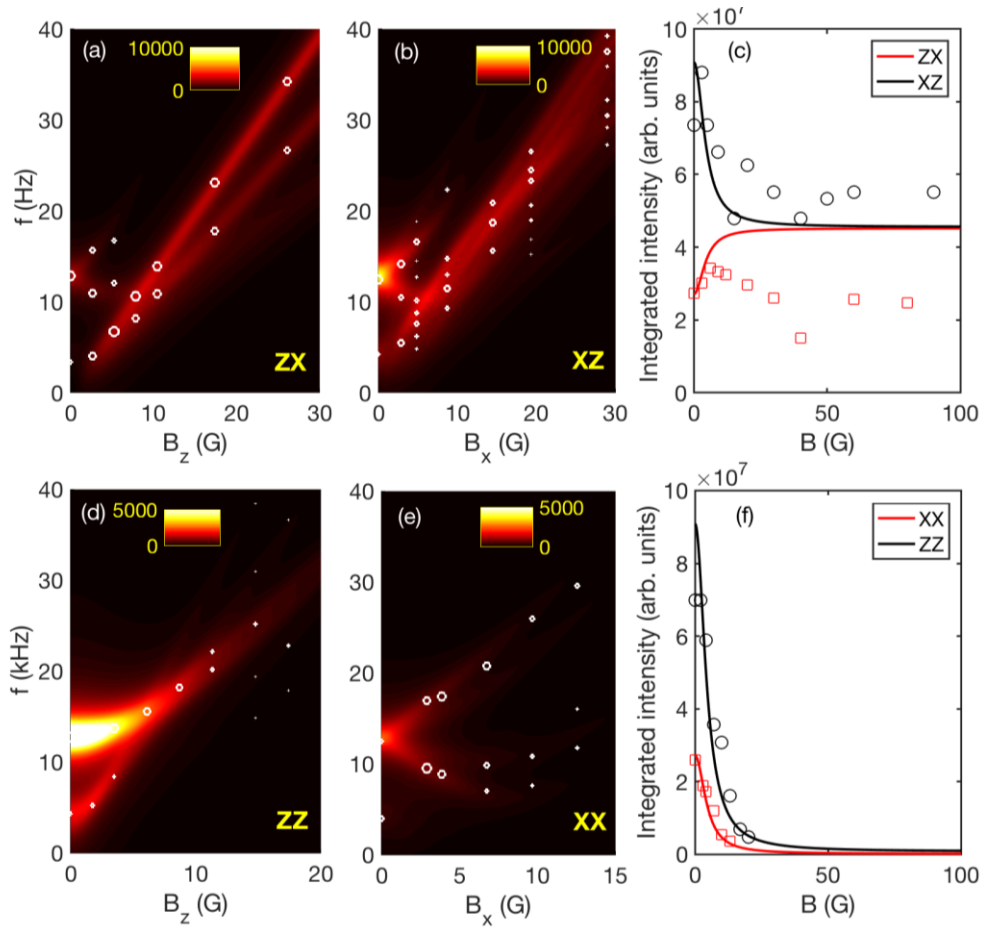


Рисунок 45 – Трехмерное представление (colormap) расчетных спектров поглощения в двух поперечных: (a)  $B_z \perp B_x^1$  и (b)  $B_x \perp B_z^1$  и в двух продольных: (d)  $B_z \parallel B_z^1$  и (e)  $B_x \parallel B_x^1$  геометриях. Цветом показана рассчитанная интенсивность поглощения. Белыми кружками обозначены частотные положения экспериментальных пиков поглощения, полученные из подгонок спектров функциями Лоренца. Размеры кружков пропорциональны интегральной интенсивности поглощения каждого наблюдаемого в эксперименте пика. Справа от colomaps приведены графики зависимостей интегрального поглощения от каждого экспериментального (красные и черные символы) и рассчитанного (красные и черные линии) спектра в четырех геометриях: (c) двух поперечных и (f) двух продольных.

Наилучшая подгонка, которая представлена на рисунках 44 и 45, соответствует тому, что все энергетические параметры  $E_{QZ}^i$ ,  $E_{QR}^i$  и  $E_{QI}^i$ , которые определяются уравнениями (4.11) – (4.13), не равны нулю. Это означает, что источниками квадрупольных взаимодействий в образце являются напряжение/сжатие (которые определяются параметрами  $E_{QZ}^i$  и  $E_{QR}^i$ ) и сдвиговая деформация либо внутреннее электрическое поле в образце (за эти два вклада отвечает один параметр  $E_{QI}^i$ ).

Как было сказано выше (в частности, при описании квадрупольных взаимодействий в образце S1), источником механических деформаций может быть разница между коэффициентами температурного расширения медного держателя и GaAs при охлаждении до  $T = 20\text{ K}$ . А также клей может вызвать некоторое неконтролируемое сжатие образца. Величины получившихся энергетических параметров приведены в таблице 5.

Таблица 5 – Величины квадрупольных энергетических параметров для трех изотопов GaAs, полученные в результате подгонок рассчитанных спектров поглощения к экспериментальным.

Изотоп GaAs	$^{71}\text{Ga}$	$^{69}\text{Ga}$	$^{75}\text{As}$
Энергетический параметр (кГц)			
$E_{QZ}/h$	0.45	0.73	-1.5
$E_{QR}/h$	-2	-3.3	6.5
$E_{QI}/h$	-2	-3.1	-11

С учетом известных компонент квадрупольных тензоров для трех изотопов GaAs, приведенных в таблице 3, можно из формул для энергетических параметров (4.11) – (4.13) получить величины давлений  $p_1$  и  $p_2$ , угла  $\zeta$  и встроенного электрического поля  $F$ :  $p_1 = -4$  МПа,  $p_2 = 2$  МПа,  $\zeta = 0.19$  и  $F = 4$  кВ/см. Наличие электрического поля вблизи поверхности образца возможно из-за закрепления уровня Ферми на поверхностных состояниях в центре запрещенной зоны GaAs [55], однако такое поле может ионизовать доноры, тем самым подавляя динамическую ядерную поляризацию через локализованные на донорах электроны [56, 57]. Чтобы выяснить, откуда может появиться электрическое поле вблизи поверхности образца, был сделан анализ образца с помощью сканирующей электронной микроскопии. Был использован метод регистрации тока, идущего через образец, который индуцировался электронным пучком (EBIC – electron beam induced current. Измерения были сделаны в ФТИ им. А.Ф. Иоффе сотрудниками А. И. Лихачевым и А. В. Нащекиным). Анализ показал, что образец S1 состоит из подложки  $p$ -GaAs, находящейся на расстоянии 77 мкм от поверхности  $n$ -GaAs образца. Рост тока (рисунок 46) соответствует увеличению электрического поля в области пространственного заряда (ОПЗ) на  $p$ - $n$  переходе. Так, поле, созданное ОПЗ по оценкам составляет  $F_{p-n} = 25$  кВ/см. Однако вблизи поверхности образца, откуда собирался сигнал ФЛ, ток не меняется, что говорит о том, что даже если и есть некоторое поле вблизи поверхности, то оно меньше  $F < 1$  кВ/см. Но

такая величина поля эквивалентна тому, что этого поля нет:  $F = 0$ . Поэтому, чтобы не нарушить качество подгонки (не менять величины энергетических параметров, приведенных в таблице 5), нужно предположить, что компонента  $S_{44}$  градиенто-эластического тензора для изотопа мышьяка отлична от той, что приведена в таблице 4. Иначе, просто меняя параметры  $p_1$ ,  $p_2$  и  $\zeta$ , невозможно получить те же величины  $E_{QZ}^i$ ,  $E_{QR}^i$  и  $E_{QI}^i$ , что и в таблице 5. Так,  $S_{44}({}^{75}\text{As}) = 17 \pm 3$  В/м<sup>2</sup>, что почти в два раза меньше величины  $S_{44}$  из таблицы 5, которая была получена в работе [23]. При этом квадрупольные взаимодействия в образце при  $F = 0$  определяются только деформацией, поэтому величины давлений стали больше:  $p_1 = 10$  МПа,  $p_2 = -11$  МПа и  $\zeta = -0.64$ .

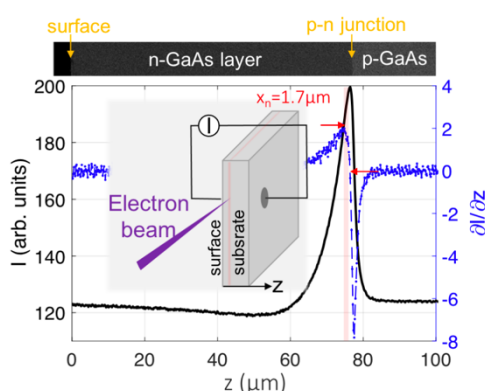


Рисунок 46 – Ток, индуцируемый электронным пучком (черная линия), и его производная (синяя линия) в зависимости от положения пучка на сколе образца S1. Розовая вертикальная полоска обозначает размер области ОПЗ в окрестности р-п перехода между подложкой  $p$ -GaAs и образцом  $n$ -GaAs.

Таким образом, анализ спектров поглощения, полученных в четырех экспериментальных конфигурациях, позволяет определить источники и величины квадрупольных взаимодействий в образце. Для образца S1 квадрупольные взаимодействия вызваны только деформациями в различных направлениях. Однако, чтобы исключить электрическое поле на поверхности образца, которое также может являться источником квадрупольного взаимодействия (и, как показывают независимые эксперименты, для образца S1 оно равно нулю), нужно примерно в два раза уменьшить компоненту  $S_{44}$  для изотопа мышьяка по сравнению с ранее полученной из работы [23] величиной.

#### 4.4 Выводы главы

Данная глава описывает развитие методики спектроскопии отогрева ядерных спинов в объемных образцах *n*-GaAs. На примере образца S2 было показано, что данная методика чувствительна даже к небольшим величинам квадрупольного взаимодействия, а также позволяет детектировать наличие квадрупольных взаимодействий в спектрах поглощения, измеренных в слабых внешних статических магнитных полях (в отличие от ЯМР и ОДЯМР). Полная и отлаженная методика спектроскопии отогрева продемонстрирована на примере образца S1. Она состоит из измерений спектров поглощения оптически охлажденной ЯСС в четырех экспериментальных конфигурациях и из подгонок полученных спектров теоретической модели. Из подгонок можно определить тип и величину квадрупольного взаимодействия в изучаемом образце. В частности, для образца S1 было получено, что источников квадрупольного взаимодействия может являться деформация в различных направлениях и встроенное электрическое поле  $F = 4$  кВ/см. Однако дополнительные эксперименты по ЕВИС показали, что на поверхности образца электрическое поле близко к нулю. Поэтому, чтобы сохранить согласие между экспериментальными и теоретическими спектрами, была в два раза изменена компонента  $S_{44}$  градиенто-эластического тензора для изотопа мышьяка по сравнению с ранее известной величиной из работы [23]. Такой результат имеет место быть, однако он требует дополнительных экспериментальных подтверждений, что можно обозначить как план дальнейших исследований.

## **Глава 5. Селективное охлаждение ядерных спинов квантовой ямы GaAs с помощью адиабатического размагничивания во вращающейся системе координат**

Данная глава будет посвящена экспериментам, нацеленным на достижение минимально возможной ядерной спиновой температуры оптическими методами на примере нелегированной квантовой ямы GaAs/Al<sub>0.35</sub>Ga<sub>0.65</sub>As. Охлаждение проходило с помощью метода адиабатического размагничивания во вращающейся системе координат (ВСК), описанного в разделе 1. 11. Также было реализовано селективное охлаждение: т. е. охлаждались ядерные спины только какого-то одного изотопа. Таким методом удалось получить рекордно низкую спиновую температуру. В конце главы будут приведены расчеты диполь-дипольного и квадрупольного вкладов в локальные поля, которые определяются секулярной частью диполь-дипольного и квадрупольного взаимодействий и зависят от направления внешнего магнитного поля.

Результаты данной главы опубликованы в статье [58].

### **5.1 Охлаждение ядер изотопа <sup>75</sup>As до рекордно низких спиновых температур методом адиабатического размагничивания во вращающейся системе координат**

Методика экспериментов по адиабатическому размагничиванию во вращающейся системе координат была описана в разделе 2. 2. 2. Измерения были сделаны в наклонном относительно оси роста образца магнитном поле  $B_{ext} = 7.5$  кГс. Углы наклона составляли  $\theta = 66^\circ$  и  $80^\circ$ . Также регулировалась фаза поддерживающего импульса, относительно разворачивающего  $\frac{\pi}{2}$  импульса. Так, для того чтобы получить отрицательную спиновую температуру развернутого изотопа, использовался сдвиг по фазе  $\varphi = 270^\circ$ , а для достижения положительной спиновой температуры сдвиг по фазе был равен  $\varphi = 90^\circ$ .

Первая серия экспериментов была проведена при угле наклона статического поля  $\theta = 66^\circ$  и при сдвиге фазы поддерживающего поля  $\varphi = 270^\circ$  и  $\varphi = 90^\circ$ . В данных измерениях на первой стадии накачивались ядра только изотопа <sup>75</sup>As, ядерные поля изотопов галлия стирались

прогонкой переменного поля через их резонансную частоту в поле  $B_{ext} = 7.5 \text{ кГс}$ .  $\frac{\pi}{2}$  импульс разворачивал ядерную намагниченность изотопа  $^{75}\text{As}$  перпендикулярно полю  $B_{ext}$  и затем прикладывалось поддерживающее поле с начальной амплитудой  $b_0 = 21 \text{ Гс}$ . На последнем этапе шло адиабатическое размагничивание: поддерживающее поле выключалось до величины  $b$ , которое менялось от  $-10$  до  $10 \text{ Гс}$ , затем поддерживающее поле выключалось до нуля и измерялся Фурье спектр сигнала спада свободной индукции, из которого по формуле (из раздела 2. 2. 2) через амплитуды первой и второй гармоник высчитывалось полученное после адиабатического размагничивания ядерное поле  $B_N$  для каждой из величин поддерживающего поля  $b$  (рисунок 47, голубые кружки, красные ромбы).

Полученная зависимость  $B_N(b)$  подгонялась по формуле (синие и красные линии на рисунке 47):

$$B_N(b) = B_N(b_0) \frac{b}{b_0} \sqrt{\frac{b_0^2 + B_L^2}{b^2 + B_L^2}} \quad (5.1)$$

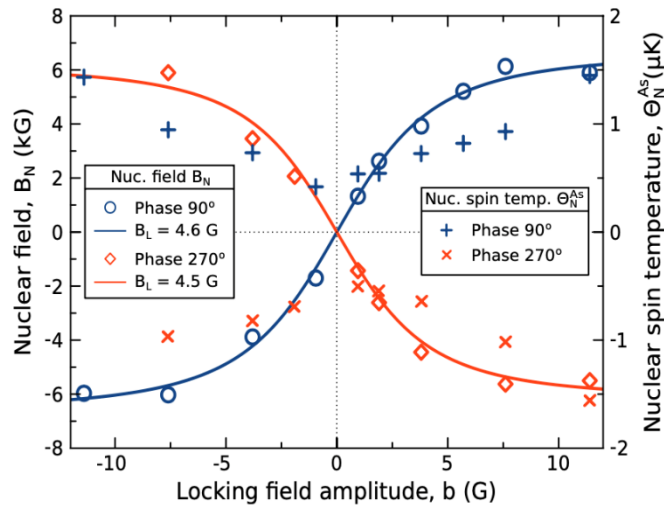


Рисунок 47 – Экспериментальная зависимость величины ядерного поля (левая ось ординат) и величины ядерной спиновой температуры (правая ось ординат) развернутого изотопа  $^{75}\text{As}$  от величины конечного поддерживающего поля  $b$ , в которое происходило адиабатическое размагничивание для сдвига по фазе  $\varphi = 90^\circ$  (синие кружки и кресты для ядерного поля и спиновой температуры соответственно) и  $\varphi = 270^\circ$  (красные ромбы и кресты для ядерного поля и спиновой температуры соответственно) при угле наклона внешнего поля  $\theta = 66^\circ$ . Синие и красные линии являются подгоночными кривыми, построенными по формуле (5.1) с величиной локального поля  $B_L$  в качестве подгоночного параметра.

В качестве подгоночного параметра использовалась величина локального поля, которое получилось  $B_L = 4.6 \text{ Гс}$  для положительной спиновой температуры и  $B_L = 4.5 \text{ Гс}$  для отрицательной спиновой температуры. Зная величину локального поля, можно вычислить

минимальную величину ядерной спиновой температуры, достигнутой в результате адиабатического размагничивания в поле  $b = 0$ :

$$\theta_N^{As}(b = 0) = \theta_N^{As}(b_0) \frac{B_L}{\sqrt{b_0^2 + B_L^2}}, \quad (5.2)$$

где  $\theta_N^{As}(b_0) = \frac{\hbar \gamma_{As} b_0 I(I+1)}{3 \langle I \rangle}$ ,  $\langle I \rangle = \frac{\hbar \gamma_e B_{\perp}(0)}{A_{As}}$  – средний спин ядер развернутого изотопа  $^{75}\text{As}$ ,  $\gamma_e = 3.52 * 10^6 \frac{\text{рад}}{\text{Гс} \cdot \text{с}}$  – гиромагнитное отношение электрона,  $A_{As} = 43.5 \text{ мкЭВ}$  – константа сверхтонкого взаимодействия изотопа  $^{75}\text{As}$ .

Рассчитанные величины ядерной спиновой температуры  $\theta_N^{As}(b = 0)$  приведены в таблице 6 жирным шрифтом.

Таблица 6 – Величины ядерной спиновой температуры, определенные из экспериментов по адиабатическому размагничиванию в нулевое поле. Жирным шрифтом выделены величины спиновой температуры, достигнутые в первой серии экспериментов при накачке только ядер изотопа  $^{75}\text{As}$ .

$\theta$ (°)	$\varphi$ (°)	$\theta_N^{As}(b = 0)$ (мК)
80	90	1.2
66	90	1.6
	270	-2.1
	90	<b>0.54</b>
	270	<b>-0.57</b>

Вторая серия экспериментов проходила при углах наклона постоянного поля  $\theta = 66^\circ$  и  $\theta = 80^\circ$ , при этом на первом этапе накачивались все три изотопа GaAs:  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$ . Таким образом ядерное поле, которое компенсировало внешнее поле на момент окончания первого этапа, создавалось ядерными спинами всех трех изотопов. Остальные этапы были аналогичны этапам в первой серии экспериментов. Полученные величины ядерной спиновой температуры  $\theta_N^{As}(b = 0)$  приведены в таблице 6 обычным шрифтом.

Таким образом ядерная спиновая температура, полученная в первой серии экспериментов примерно в 2-3 раза меньше, чем температура, полученная во второй серии. Это связано с тем, что в первой серии экспериментов ядерное поле, необходимое для компенсации внешнего поля, создавалось только ядерными спинами изотопа мышьяка, а затем все это поле поворачивалось  $\frac{\pi}{2}$  импульсом и его величина была пропорциональна спиновой температуре, с которой начиналось

адиабатическое размагничивание  $\theta_N^{As}(b_0)$ . При этом во второй серии экспериментов ядерное поле создавалось всеми тремя изотопами, а  $\frac{\pi}{2}$  также разворачивал только намагниченность мышьяка, которая составляла около половины от достигнутого ядерного поля (изотопная фракция мышьяка равна 0.5). Поэтому в данном случае спиновая температура, с которой начиналось размагничивание, была в два раза выше, чем в первой серии. И соответственно, спиновая температура после размагничивания оказалась примерно в два раза выше.

Достигнутые ранее величины ядерной спиновой температуры в GaAs были равны в объёмном образце 5 мК [7], а в структуре с микрорезонатором 2 мК [26]. Однако данные спиновые температуры были достигнуты охлаждением ядерных спинов всех изотопов. Методика адиабатического размагничивания во ВСК позволяет селективно охлаждать ядерные спины и тем самым достичь спиновой температуры в четыре раза более низкой, чем в предыдущих экспериментах.

## 5.2 Расчет спин-спинового вклада в величину локального поля

Локальное поле имеет квадрупольный и спин-спиновый (диполь-дипольный) вклады:  $B_L^2 = B_{SS}^2 + B_{LQ}^2$ . Из экспериментов по адиабатическому размагничиванию во ВСК возможно определить только величину самого локального поля  $B_L$ , без разделения на два вклада. В данном разделе диссертации приведен расчет величины спин-спинового вклада в величину локального поля в кристалле GaAs. Локальное поле будет рассчитываться как сумма двух вкладов: вклад в локальное поле ядерных спинов атомов As от других атомов As и Ga.

Квадрат спин-спинового вклада в локальное поле можно вычислить по формуле:

$$B_{SS}^2 = \frac{Tr[\hat{H}_{SS}^2]}{\hbar^2 \gamma_{As}^2 Tr[I_B^2]}, \quad (5.3)$$

где  $\hat{H}_{SS}$  – секулярная часть (коммутирующая с Гамильтонианом Зеемановского взаимодействия) спин-спинового Гамильтониана [59]:



$$\hat{H}_{SS} = \frac{1}{2} \hbar^2 \gamma_{As}^2 \sum_{j>k} r_{jk}^{-3} (1 - 3 \cos^2 \theta_{jk}) (3 \hat{I}_{jk} \hat{I}_{kz} - \vec{\hat{I}}_j \vec{\hat{I}}_k) + \frac{1}{2} \hbar^2 \gamma_{As} \sum_{j>k'} \gamma_{kGa} [\hat{A}_{jk'} + (\hat{B}_{jk'} + r_{jk'}^{-3}) (1 - 3 \cos^2 \theta_{jk'})] \hat{I}_{jz} \hat{I}_{k'z}, \quad (5.4)$$

где индексы  $j$  и  $k$  нумеруют атомы As, а индекс  $k'$  – атомы Ga,  $r_{jk}, r_{jk'}$  – расстояния между  $j$ -м и  $k$ -м и  $j$ -м и  $k'$ -м атомами,  $\theta_{jk}$  и  $\theta_{jk'}$  – углы между  $r_{jk}, r_{jk'}$  и направлением внешнего магнитного поля. Первое слагаемое в Гамильтониане учитывает вклад атомов As в локальное поле As, а второе слагаемое учитывает вклад атомов Ga в локальное поле As. Во втором слагаемом используются только z-компоненты ядерных спинов Ga, т. к. Ларморовы частоты прецессии Ga отличны от частот прецессии As. Это приводит к не сохранению энергии Ga при флип-флоп переходах с As, из-за чего такие переходы не входят в усеченный Гамильтониан.  $\hat{A}_{jk'}$  и  $\hat{B}_{jk'}$  – обменный и псевдодипольный коэффициенты. Они не равны нулю только для четырех атомов Ga, которые являются ближайшими к  $j$ -ому ядру As.

Для кристалла GaAs, в величину спин-спинового локального поля вносят вклад ядерные спины As ( $B_{As}^2$ ), четыре соседних к каждому атому As ядерных спина Ga ( $B_{Ga}^2$ ), а также спины оставшихся атомов Ga ( $B_{RGA}^2$ ). Расположение выбранных атомов в кристаллической решетке приведено на рисунке 48.

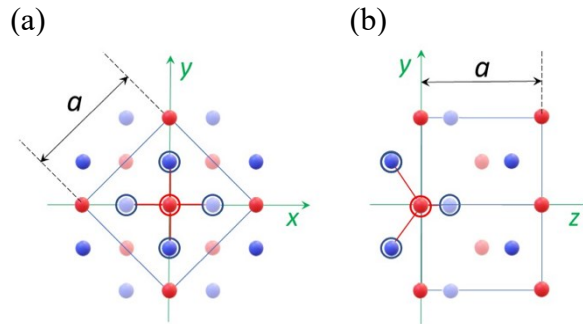


Рисунок 48 – Часть кристаллической решетки GaAs вдоль кристаллографических направлений (a) [001] и (b) [110]. Выбранный для расчета атом As обозначен обведенным красным кружком. Его четыре соседних атома Ga обозначены обведенными синими кружками. Оставшиеся яркие красные и синие кружки обозначают четные нумерации атомов Ga и As (индекс  $k$ ), а тусклые обозначают нечетные нумерации (индекс  $k'$ ).

Согласно рисунку 48, каждому атому можно задать положение в данной системе координат. Для атомов As:

$$x_{nk}^{As} = a \left[ \frac{\sqrt{2}}{2} n + \frac{\sqrt{2}}{4} \left( \frac{1 - (-1)^k}{2} \right) \right], \quad (5.5)$$

$$y_{lk}^{As} = a \left[ \frac{\sqrt{2}}{2} l + \frac{\sqrt{2}}{4} \left( \frac{1 - (-1)^k}{2} \right) \right], \quad (5.6)$$

$$z_k^{As} = a \frac{k}{2}, \quad (5.7)$$

где  $n, l, k$  – индексы, определяющие положения атомов As в кристаллической решетке.

Для атомов Ga:

$$x_{n'k'}^{Ga} = a \left[ \frac{\sqrt{2}}{2} n' + \frac{\sqrt{2}}{4} \left( \frac{1 - (-1)^{k'}}{2} \right) \right], \quad (5.8)$$

$$y_{l'k'}^{Ga} = a \left[ \frac{\sqrt{2}}{2} l' + \frac{\sqrt{2}}{4} \left( \frac{1 - (-1)^{k'}}{2} \right) \right], \quad (5.9)$$

$$z_k^{As} = a \left( \frac{k'}{2} - \frac{1}{4} \right), \quad (5.10)$$

где  $n', l', k'$  – индексы, определяющие положения атомов Ga в кристаллической решетке.

Знание положений атомов разных изотопов в кристаллической решетке необходимо для вычисления следа квадрата Гамильтониана спин-спиновых взаимодействий  $Tr[\hat{H}_{SS}^2]$ . Для вычисления следа также нужно воспользоваться правилом:

$$Tr(\hat{I}_{j\alpha} \hat{I}_{k\beta}) = \frac{I(I+1)(2I+1)}{3} \delta_{jk} \delta_{\alpha\beta}. \quad (5.11)$$

Для вклада атомов As числитель в формуле (5.3):

$$Tr[\hat{H}_{SSAs}^2] = \frac{N_{As}}{2} \frac{75}{4} \left( \left( \frac{\frac{3}{2} \gamma_{As}^2 \hbar^2}{a^3} \right)^2 \right) \sum_j \frac{(1 - 3 \cos^2 \theta_j)^2}{(r_j/a)^6}, \quad (5.12)$$

где  $N_{As}$  – число атомов мышьяка. Суммирование производится по всем атомам мышьяка, находящимся вокруг выбранного атома As.

Знаменатель в формуле (5.3):

$$Tr(I_{ZAs}^2) = N_{As} (\hbar \gamma_{As})^2 \frac{I(I+1)(2I+1)}{3} = 5 N_{As} (\hbar \gamma_{As})^2. \quad (5.13)$$

Получается, что вклады в величину спин-спиновой части локального поля от изотопов As:

$$B_{LAs}^2 = \frac{15}{8} \left( \frac{3}{2} \frac{\hbar \gamma_{As}}{a^3} \right)^2 F_{As}, \quad (5.14)$$

где  $F_{As} = \sum_j \frac{(1-3\cos^2\theta_j)^2}{(r_j/a)^6}$  - безразмерная решеточная сумма.

Для вклада атомов Ga числитель в формуле (5.3):

$$Tr[\hat{H}_{SSGa}^2] = N_{As} \frac{25}{4} \left( x_{69} \left( \frac{3}{2} \gamma_{As} \gamma_{69Ga} \hbar^2 / a^3 \right)^2 + x_{71} \left( \frac{3}{2} \gamma_{As} \gamma_{71Ga} \hbar^2 / a^3 \right)^2 \right) \sum_k \frac{(1-3\cos^2\theta_k)^2}{(r_k/a)^6}, \quad (5.15)$$

где  $x_{69}$  и  $x_{71}$  - изотопные фракции атомов  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{71}\text{Ga}$ .

Итого вклад от атомов Ga в величину спин-спиновой части локального поля равен:

$$B_{LGA}^2 = \frac{5}{4} \left( x_{69} \left( \frac{3}{2} \hbar \gamma_{69Ga} / a^3 \right)^2 + x_{71} \left( \frac{3}{2} \hbar \gamma_{71Ga} / a^3 \right)^2 \right) F_{Ga}, \quad (5.16)$$

где  $F_{Ga} = \sum_k \frac{(1-3\cos^2\theta_k)^2}{(r_k/a)^6}$  - безразмерная решеточная сумма.

В формулах выше  $\theta_j$  и  $\theta_k$  - углы между внешним магнитным полем и направлением от выбранного атома As на j-й атом As и k-й атом Ga, соответственно. Запишем внешнее магнитное поле в сферической системе координат:  $\vec{B} = (\vec{e}_x \sin\theta \cos\alpha + \vec{e}_y \sin\theta \sin\alpha + \vec{e}_z \cos\theta)$ . Тогда полученные решеточные суммы можно записать в следующем виде:

$$F(\Theta, \alpha) = C + D(\sin^4\theta(\cos^4\alpha + \sin^4\alpha) + \cos^4\theta), \quad (5.17)$$

где коэффициенты C и D определяются через величины сумм  $F_{As}(\Theta, \alpha)$  и  $F_{Ga}(\Theta, \alpha)$  для двух пар углов  $\theta$  и  $\alpha$ :

$$C = 2F\left(\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{4}\right) - F(0,0), \quad (5.18)$$

$$D = 2\left(F(0,0) - F\left(\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{4}\right)\right). \quad (5.19)$$

Коэффициенты C и D для изотопов равны:  $C(\text{As}) = 127.8$ ,  $C(\text{Ga}) = 32$ ,  $D(\text{As}) = -58.9$ ,  $D(\text{Ga}) = 18.3$ .

Таким образом спин-спиновый вклад в величину локального поля зависит от направления внешнего магнитного поля (зависит от углов  $\theta$  и  $\alpha$ ) и определяется секулярной частью спин-спинового Гамильтониана.

### 5.3 Определение квадрупольного вклада в величину локального поля

Величина локального поля в отсутствии квадрупольных взаимодействий в образце определяется только спин-спиновыми взаимодействиями внутри ЯСС и, согласно работе [12], должна быть равна  $B_L = B_{SS} = 1.5$  Гс. Как отмечалось выше, наличие квадрупольных взаимодействий увеличивает локальное поле:  $B_L^2 = B_{SS}^2 + B_{LQ}^2$  и, как следствие, увеличивает минимально возможную ядерную спиновую температуру (см. раздел 1.9), но только в том случае, если энергии квадрупольных и спин-спиновых взаимодействий сравнимы (при наличии сильного квадрупольного взаимодействия ядерная спиновая температура не устанавливается). В изучаемом образце с КЯ эти энергии сравнимы, поэтому спин-спиновый и квадрупольный резервуары энергии взаимодействуют между собой, и ЯСС характеризуется общей спиновой температурой.

В изучаемой планарной структуре предполагается, что сдвиговая деформация в плоскостях  $(x, z)$  и  $(y, z)$  отсутствует. Поэтому ГЭП может быть вызван одноосной деформацией вдоль оси роста структуры  $z$ , двуосной деформацией в плоскости  $(x, y)$ , а также встроенным электрическим полем, которое может возникнуть также вдоль оси роста из-за пространственного или поверхностного зарядов.

Для определения величины квадрупольного вклада в локальное поле были сделаны эксперименты при различных направлениях внешнего магнитного поля: варьировались угол  $\theta = 55^\circ$  и  $66^\circ$ , определяющий направление поля относительно роста структуры, и азимутальный угол  $\alpha = 0^\circ, 45^\circ$  и  $90^\circ$ , определяющий направление поля относительно плоскости образца (рисунок 49).

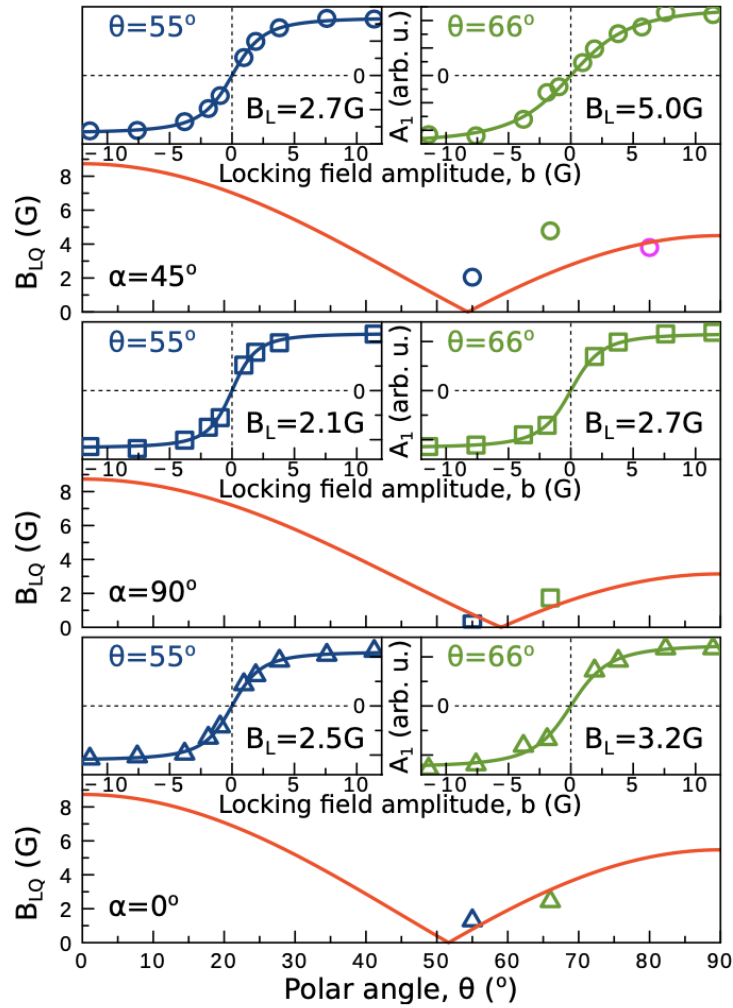


Рисунок 49 – Зависимость квадрупольного вклада в локальное поле  $B_{LQ}$  от угла  $\theta$  для трех величин азимутального угла  $\alpha = 0^\circ, 45^\circ$  и  $90^\circ$  (красные линии). Правые и левые вставки на каждом из трех графиков показывают экспериментальные данные по адиабатическому размагничиванию во ВСК для углов  $\theta = 55^\circ$  (синие символы) и  $\theta = 66^\circ$  (зеленые символы). Синие и зеленые линии – подгоночные кривые по формуле (5.1), из которых определялись величины локальных полей  $B_L$ .

Из экспериментов по адиабатическому размагничиванию во ВСК определялась величина  $B_L$  для разных комбинаций углов  $\theta$  и  $\alpha$  (рисунок 49 синие и зеленые линии на вставках). Таким образом, вычислив спин-спиновый вклад в локальное поле  $B_{SS}$  (см. предыдущий раздел) и измерив величину локального поля  $B_L$ , можно найти квадрупольный вклад  $B_{LQ}$  для конкретного набора углов  $\theta$  и  $\alpha$ . Величины квадрупольного вклада приведены на рисунке 49 в виде цветных символов. Красная линия, подгоняющая зависимость квадрупольного вклада от угла  $\theta$ , построена по формуле:

$$B_{LQ} = \left[ \frac{\text{Tr}[\hat{H}_Q^2]}{\hbar^2 \gamma_{As}^2 \text{Tr}[\hat{I}_B^2]} \right]^{1/2} = \frac{1}{4\sqrt{5}\hbar\gamma_N} |E_{Qz}(3\cos^2\theta - 1) + \sqrt{3}E_{Q\perp}\sin^2\theta\cos 2(\zeta - \alpha)|, \quad (5.20)$$

где  $E_{Q\perp} = \sqrt{E_{QR}^2 + E_{QI}^2}$ . Квадрупольные параметры  $E_{Qz}, E_{QR}, E_{QI}$  определяются формулами (4.11) – (4.13),  $\zeta$  – угол между главной осью тензора ГЭП в плоскости и кристаллической осью [100] и задается через квадрупольные параметры:

$$\cos(2\zeta) = \frac{E_{QR}}{\sqrt{E_{QR}^2 + E_{QI}^2}} \quad (5.21)$$

$$\sin(2\zeta) = \frac{E_{QI}}{\sqrt{E_{QR}^2 + E_{QI}^2}} \quad (5.22)$$

Подгоночными параметрами были  $E_{Qz}$  и  $E_{Q\perp}$ .

Для угла  $\zeta = 134^\circ$  они получились:  $E_{Qz} = 2 * 10^{-11}$ эВ и  $E_{Q\perp} = 3 * 10^{-12}$ эВ.

## 5.4 Выводы главы

В заключительной главе диссертации представлены результаты экспериментов по охлаждению ядерных спинов изотопа  $^{75}\text{As}$  с помощью адиабатического размагничивания во вращающейся системе координат в образце с квантовой ямой GaAs/AlGaAs. Ядерные спины были поляризованы в наклонном внешнем магнитном поле, после чего шло адиабатическое размагничивание, которое состояло из последовательности радиочастотных импульсов:  $\frac{\pi}{2}$  – импульса, разворачивающего ядра изотопа  $^{75}\text{As}$  и поддерживающего импульса, амплитуда которого понижалась до нуля. Такое понижение амплитуды обеспечивало адиабатическое размагничивание. Таким образом удалось охладить взаимодействующие ядерные диполь-дипольные и квадрупольные резервуары энергий до рекордно низких спиновых температур  $\theta_N^{As} = 0.54$  и  $(-0.57)$  мК. Это является важным шагом на пути к достижению спиновых температур  $\sim 1$  мК, необходимых для обнаружения поляронного состояния.

Также экспериментально показан факт, что величина локального поля зависит от направления внешнего магнитного поля по отношению к кристаллическим осям. Такую

зависимость вносит квадрупольный вклад в локальное поле, который был определен из экспериментов по адиабатическому размагничиванию во ВСК для различных наборов азимутального и полярного углов, задающих направление внешнего магнитного поля.

## Заключение

Данная диссертация посвящена изучению оптически охлажденной ядерной спиновой системы в объемных кристаллах  $n$ -GaAs, а также в нелегированной квантовой яме GaAs/AlGaAl. Экспериментально не решенная задача – обнаружение магнитного порядка ядерных спинов в полупроводниках, который теоретически возможен при экстремально низких ядерных спиновых температурах, ставит ряд промежуточных экспериментальных задач. В частности, определение вкладов в локальное поле, которое ограничивает минимально возможную спиновую температуру, и поиск эффективных методик охлаждения ядерной спиновой системы. Данные задачи были решены для конкретных полупроводниковых структур.

Первая оригинальная часть диссертации посвящена развитию методики спектроскопии отогрева ядерных спинов объемных кристаллов  $n$ -GaAs. Данная методика заключается в измерении спектров поглощения охлажденной ядерной спиновой системы в четырех взаимных ориентациях переменного и статического магнитных полей. Анализ с использованием теоретической модели полученного набора спектров поглощения позволяет идентифицировать тип и величину квадрупольного взаимодействия в образце. Первые эксперименты, которые заложили начало данной методики, были сделаны для образца S2 только в двух геометриях эксперимента. Элементарный анализ спектров поглощения, полученных в двух точках на образце, показал, что источником квадрупольного взаимодействия является различные коэффициенты температурного расширения медного держателя и GaAs. Полноценная методика спектроскопии отогрева была продемонстрирована на образце S1. Так, для образца S1 теоретический анализ показал, что источниками квадрупольных взаимодействий являются деформация в различных направлениях и встроенное электрическое поле. Однако дополнительные эксперименты показали, что встроенное электрическое поле в данном образце пренебрежимо мало. Поэтому чтобы не нарушать полученное согласие теории и эксперимента, было предложено изменить определенную ранее величину компоненты тензора  $S_{44}$  для мышьяка. Наличие квадрупольного взаимодействия в образце S1 привело к увеличению локального поля, которое было определено в начале второй главы с использованием установки по спектроскопии отогрева ядерных спинов.

Вторая оригинальная часть диссертации посвящена глубокому охлаждению ядерной спиновой системы квантовой ямы GaAs/AlGaAl с использованием метода адиабатического размагничивания во вращающейся системе координат. Такая методика позволяет охлаждать



ядерные спины выбранного изотопа. Так, в главе 5 измерялась ядерная спиновая температура изотопа  $^{75}\text{As}$ , которая получилась рекордно низкой:  $\theta_N^{\text{As}} = 0.54$  и  $(-0.57)$  мкК. Также был получен квадрупольный вклад в локальное поле, величина которого зависела от азимутального и полярного углов, задающих направление внешнего магнитного поля.

В качестве дальнейших планов можно выделить проверку величины компоненты тензора  $S_{44}$  для мышьяка: подбор образцов с известной деформацией (или с отсутствием деформации) и использование их в экспериментах с контролируемым давлением. А также в планах эксперименты по достижению минимально возможных спиновых температур оптическими методами и измерение поведения низкочастотной части спектров коррелятора ядерной спиновой системы, охлажденной до минимально возможных температур.

**Благодарности.** Автор диссертации выражает благодарность своему научному руководителю Роману Викторовичу Чербунину, а также коллегам, принимавшим активное участие в данной работе: Кириллу Витальевичу Кавокину (Лаборатория Оптики спина им. И.Н. Уральцева, СПбГУ), Владимиру Константиновичу Калевичу (ФТИ им. А. Ф. Иоффе), Марии Владимировой (Charles Coulomb Laboratory, университет г. Монпелье, Франция), Младену Котуру (университет г. Дортмунд, Германия). Также автор благодарен Ивану Владимировичу Игнатьеву и Марии Сергеевне Кузнецовой (Лаборатория Оптики спина им. И.Н. Уральцева, СПбГУ) за их поддержку и советы на протяжении всего периода обучения в аспирантуре. Автор диссертации выражает благодарность грантам РФФИ Аспиранты 19-32-90084 и РФФИ ННИО\_а 19-52-12043 за финансовую поддержку.

### Список литературы

1. Фетисов Ю. К., Сигов А. С. СПИНТРОНИКА: ФИЗИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ И УСТРОЙСТВА // РЭНСИТ – 2018. – Т. 10. – С. 343.
2. Optical Orientation / под ред. F. Meier, B. P. Zakharchenya. – Amsterdam: North-Holland, 1984.
3. Merkulov I. A., Efros Al. L., Rosen M. Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots // Phys. Rev. B. – 2002. – Т. 65. - С. 205309.
4. Меркулов И. А. Образование ядерного спинового полярона при оптической ориентации в полупроводниках типа GaAs // ФТТ – 1998 – Т. 40, № 6. – С. 1018-1021.
5. Scalbert D. Nuclear polaron beyond the mean-field approximation // Phys. Rev. B. – 2017. – Т. 95. – С. 245209.
6. Kalevich V. K., Fleisher V. G. Optical detection of NMR with dynamic cooling of the nuclear spin system of a semiconductor by polarized light // Bull. Acad. Sci. USSR Phys.Ser. – 1983. – Т. 47, №5.
7. Kalevich V. K., Kulkov V. D., Fleisher V. G. Onset of a nuclear polarization front due to optical spin orientation in a semiconductor // JETP Lett. – 1982. – Т. 35, № 20.
8. Dzhioev R. I., Kavokin K. V., Korenev V. L., Lazarev M. V., Meltser B. Ya., Stepanova M. N., Zakharchenya B. P., Gammon D., Katzer D. S. Low-temperature spin relaxation in *n*-type GaAs // Phys. Rev. B. – 2002. – Т. 66. – С. 245204.
9. Блох Ф. Ядерный магнетизм // УФН – 1995. – Т. LVI, вып.3.
10. Микушев В. М., Чарная Е. В. Ядерный магнитный резонанс в твердом теле: учебное пособие. – СПб: Издательство С.-Петербургского университета, 1995. – 204 с.
11. The principles of nuclear magnetism / A. Abragam – Oxford, University Press, 1961.
12. Paget D., Lampel G., Sapoval B., Safarov V. I. Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions // Phys. Rev. B. – 1977. – Т. 15. – С. 5780.
13. Oja A. S., Lounasmaa O. V. Nuclear magnetic ordering in simple metals at positive and negative nanokelvin temperatures // Rev. Mod. Phys. – 1997. – Т. 69, № 1. – С. 1.

14. Spin Physics in Semiconductors (2<sup>nd</sup> edition) / ed. by M. I. Dyakonov – Berlin: Springer-Verlag, 2017. Ch.1.
15. Gammon D., Efros Al. L., Kennedy T. A., Rosen M., Katzer D. S., Park D. Electron and Nuclear Spin Interactions in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots // Phys. Rev. Lett. – 2001. – T. 86, №22.
16. Bracker A. S., Stinaff E. A., Gammon D., Ware M. E., Tischler J. G., Shabaev A., Efros Al. L., Park D., Gershoni D., Korenev V. L., Merkulov I. A. Optical Pumping of the Electronic and Nuclear Spin of Single Charge-Tunable Quantum Dots // Phys. Rev. Lett. – 2005. – T. 94. – C. 047402.
17. Braun P. F., Urbaszek B., Amand T., Marie X. Bistability of the nuclear polarization created through optical pumping in  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  quantum dots // Phys. Rev. B. – 2006. – T. 74. – C. 245306.
18. Paget D. Optical detection of NMR in high-purity GaAs: Direct study of the relaxation of nuclei close to shallow donors // Phys. Rev. B. – 1981. – T. 24. – C. 3776.
19. Bloch F., Hansen W.W., Packard. M. Nuclear Induction // Phys. Rev. – 1946. – T. 69. – C. 127.
20. Purcell E. M., Torrey H. C., Pound R. V. Resonance Absorption by Nuclear Magnetic Moments in a Solid // Phys. Rev. – 1946. – T. 69. – C. 37.
21. Cross T. A., Opella S. J. Protein structure by solid-state NMR // J. Am. Chem. Soc. - 1983. – T. 105, № 2. – C. 306–308.
22. Pyykkö P. Year-2008 nuclear quadrupole moments // Molecular Phys. – 2008. – T. 106. – C. 16-18.
23. Griffiths I. M., Huang H., Rastelli A., Skolnick M. S., Chekhovich E. A. Complete characterization of GaAs gradient-elastic tensors and reconstruction of internal strain in GaAs/AlGaAs quantum dots using nuclear magnetic resonance // Phys. Rev. B. – 2019. – T. 99. – C. 125304.
24. Brun E., Mahler R. J., Mahon H., Pierce W. L. Electrically Induced Nuclear Quadrupole Spin Transitions in a GaAs Single Crystal // Phys. Rev. – 1963. – T. 129.
25. Burenkov Yu. A., Burdukov Yu. M., Davidov S. Yu., Nikanorov S. P. // Sov. Phys. Solid State. – 1973. – T. 15. – C. 1175.
26. Vladimirova M., Cronenberger S., Scalbert D., Ryzhov I. I., Zapasskii V. S., Kozlov G. G., Lemaître A., Kavokin K. V. Spin temperature concept verified by optical magnetometry of nuclear spins // Phys. Rev. B. – 2018. – T. 97. – C. 041301 (R).
27. Kotur M., Dzhioev R. I., Vladimirova M., Jouault B., Korenev V. L., Kavokin K. V. Nuclear spin warm-up in bulk  $n$ -GaAs // Phys. Rev. B. – 2016. – T. 94. – C. 081201.

28. Vladimirova M., Cronenberger S., Scalbert D., Kotur M., Dzhioev R. I., Ryzhov I. I., Kozlov G. G., Zapasskii V. S., Lemaître A., Kavokin K. V. Nuclear spin relaxation in *n*-GaAs: From insulating to metallic regime // *Phys. Rev. B.* – 2017. – Т. 95. – С. 125312.
29. Чехович Е. А. Ядерные спиновые эффекты в полупроводниковых квантовых точках при оптическом возбуждении: дисс. канд. физ.-мат. наук: 01.04.07/ Чехович Евгений Александрович. – Ч., 2010. – 141 с.
30. Агемян В. Ф. Полупроводники с сильными магнитными свойствами // СОРОСОВСКИЙ ОБРАЗОВАТЕЛЬНЫЙ ЖУРНАЛ – 2004. – Т. 8, № 2.
31. Меркулов И. А., Яковлев Д. Р., Кавокин К. В., Mackh G., Ossau O., Waag A., Landwehr G. Иерархия релаксационных времен при формировании экситонного магнитного полярона в (CdMn)Yе // *Письма в ЖЭТФ* – 1995. – Т.62, вып.4. – С. 313-317.
32. Кавокин К. В., Меркулов И. А., Яковлев Д. Р. Магнитные поляроны в гетероструктурах на основе полумагнитных полупроводников // *ФТТ* – 1998. – Т. 40, №5. – С. 800-802.
33. Tuoriniemi J. Physics at its coolest // *Nat. Phys.* – 2016. – Т. 12. – С. 11-14.
34. Zwanziger J.W., Werner-Zwanziger U., Shaw J. L., So C. Stress, strain, and NMR // *Solid State Nuclear Magnetic Resonance* – 2006. – Т. 29. – С. 113–118.
35. Urbaszek B., Marie X., Amand T., Krebs O., Voisin P., Maletinsky P., Hogele A., Imamoglu A. Nuclear spin physics in quantum dots: An optical investigation // *Rev. of Mod. Phys.* – 2013. – Т. 85.
36. Kuznetsova M. S., Cherbunin R. V., Gerlovin I. Ya., Ignatiev I. V., Verbin S. Yu., Yakovlev D. R., Reuter D., Wieck A. D., Bayer M. Spin dynamics of quadrupole nuclei in InGaAs quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2017. – Т. 95. – С. 155312.
37. Kuznetsova M. S., Flisinski K., Gerlovin I. Ya., Petrov M. Yu., Ignatiev I. V., Verbin S. Yu., Yakovlev D. R., Reuter D., Wieck A. D., Bayer M. Nuclear magnetic resonances in (In,Ga)As/GaAs quantum dots studied by resonant optical pumping // *Phys. Rev. B.* – 2014. – Т. 89. – С. 125304.
38. Flisinski K., Gerlovin I. Ya., Ignatiev I. V., Petrov M. Yu., Verbin S. Yu., Yakovlev D. R., Reuter D., Wieck A. D., Bayer M. Optically detected magnetic resonance at the quadrupole-split nuclear states in (In,Ga)As/GaAs quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2010. – Т. 82. – С. 081308.
39. Makhonin M. N., Kavokin K. V., Senellart P., Lemaître A., Ramsay A. J., Skolnick M. S., Tartakovskii A. I. Fast control of nuclear spin polarization in an optically pumped single quantum dot // *Nature Materials.* – 2011. – Т. 10.

40. Chekhovich E. A., Kavokin K. V., Puebla J., Krysa A. B., Hopkinson M., Andreev A. D., Sanchez A. M., Beanland R., Skolnick M. S., Tartakovskii A. I. Structural analysis of strained quantum dots using nuclear magnetic resonance // *Nat. Nanotechnology*. – 2012. – Т. 7. – С. 646 – 650.
41. Signorello G. Uniaxial Stress Effects in Zincblende and Wurtzite GaAs Nanowires: an Optical Spectroscopy Study: дисс. PhD / Giorgio Signorello. – Basel, 2014. – 218 с.
42. Sundfors R.K. Determination of the Gradient-Elastic Tensors for A3B5 Compounds Using Nuclear Acoustic Resonance // *Phys. Rev.* – 1969. – Т. 177, №3. – С. 177.
43. Sundfors R.K. Experimental gradient-elastic tensors and chemical bonding in III-V semiconductors // *Phys. Rev. B.* – 1974. – Т.10, №10.
44. Chekhovich E. A., Griffiths I. M., Skolnick M. S., Huang H., Covre da Silva S. F., Yuan X., Rastelli A. Cross calibration of deformation potentials and gradient-elastic tensors of GaAs using photoluminescence and nuclear magnetic resonance spectroscopy in GaAs/AlGaAs quantum dot structures // *Phys. Rev. B.* – 2018. – Т. 97. – С. 235311.
45. Guerrier D. J., Harley R.T. Calibration of strain vs nuclear quadrupole splitting in III-V quantum wells // *Apply Phys. Let.* – 1997. – Т. 70. – С. 1739.
46. Eickhoff M., Lenzmann B., Suter D., Hayes S.E., Wieck A. Mapping of strain and electric fields in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>(1-x)</sub>As quantum-well samples by laser-assisted NMR // *Phys. Rev. B.* – 2003. – Т. 67. – С. 085308.
47. Shulman R. G., Wyluda B. J., Anderson P. W. Nuclear Magnetic Resonance in Semiconductors II. Quadrupole Broadening of Nuclear Magnetic Resonance Lines by Elastic Axial Deformation // *Phys. Rev.* – 1957. – Т. 107, №4. – С. 953-958.
48. Carlos W. E., Bishop S. G., Treacy D. J. Nuclear-magnetic-resonance studies of strain in isovalently doped GaAs // *Phys. Rev. B.* – 1991. – Т. 43, №15.
49. Redfield A. Nuclear Spin Thermodynamics in the Rotating Frame // *Science* – 1969. – Т. 164, № 3883. – С. 1015-1023.
50. Slichter C. P., Holton W. Adiabatic Demagnetization in a Rotating Reference System // *Phys. Rev.* – 1961. – Т. 122, № 6. – С. 1701-1708.
51. Физика полимеров / Бартнев Г. М., Френкель С. Я. – Ленинград, Химия, 1990.
52. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kavokin K. V. and Kalevich V. K. Determination of the local field in the nuclear spin system of n - type GaAs // *IOP Conf. Series: Journal of Physics*. – 2018. – Т. 951. – С. 012006.
53. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kavokin K. V. and Kalevich V. K. Determination of the Quadrupole Splitting in Bulk n - GaAs by Warm - Up Spectroscopy // *Semiconductors*. – 2020. – Т. 54. – С. 1728-1729.

54. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kalevich V. K., Lihachev A. I., Nashchekin A. V., Vladimirova M. and Kavokin K.V. Warm-up spectroscopy of quadrupole-split nuclear spins in n-GaAs epitaxial layers // *Physical Review B*. – 2021. – T. 104, вып. 23. – С. 235201.
55. Yin Y., Yan D., Pollak F. H., Pettit G. D., Woodall J. M. Observation of Franz-Keldysh oscillations in the stress-modulated spectra of (001) n-type GaAs // *Phys. Rev. B*. – 1991. – T. 43. – С. 12138.
56. Fitzsimmons M. R., Kirby B. J., Hengartner N. W., Trouw F., Erickson M. J., Flexner S. D., Kondo T., Adelman C., Palmstrøm C. J., Crowell P. A., Chen W. C., Gentile T. R., Borchers J. A., Majkrzak C. F., Pynn R. Suppression of nuclear polarization near the surface of optically pumped GaAs // *Phys. Rev. B*. – 2007. – T. 76. – С. 245301.
57. King J. P., Li Y., Meriles C. A., Reimer J. A. Optically rewritable patterns of nuclear magnetization in gallium arsenide // *Nature Communication* – 2012. – T. 3. – С. 918.
58. Kotur M., Tolmachev D. O., Litvyak V. M., Kavokin K. V., Suter D., Yakovlev D. R. and Bayer M. Ultra - deep optical cooling of coupled nuclear spin - spin and quadrupole reservoirs in a GaAs/(Al, Ga)As quantum well // *Communications Physics*. – 2021. – T. 4. - С. 193.
59. Clough S., Coldburg W.I. Nuclear magnetic resonance study of electron coupled internuclear interactions in Thallium Chloride // *The Journal of Chemical Physics* – 1966. – T. 456. – С. 4080.

## Список рисунков

- Рисунок 1 – Зависимость времени релаксации среднего электронного спина от концентрации донорной примеси в объемных образцах n-GaAs. Символами показаны экспериментальные результаты, сплошной линией показан расчет. Пунктирной линией показана зависимость времени корреляции электронного спина  $\tau_c$  от концентрации доноров [8]. ..... 12
- Рисунок 2 – Взаимные направления внешнего магнитного поля  $\mathbf{B}_Z$  (черная стрелка), поля Оверхаузера  $\mathbf{B}_N$ , среднего ядерного спина  $\langle \mathbf{I} \rangle$  (зеленая стрелка) и поля Найта  $\mathbf{B}_e$  (синяя стрелка). ..... 18
- Рисунок 4 – Изображение макроскопической намагниченности  $\mathbf{M}$  (фиолетовая стрелка) для случая  $I = 1/2$ . Красная стрелка обозначает направление внешнего магнитного поля  $\mathbf{B}$ . Синие стрелки «вверх» обозначают количество ядерных спинов с проекцией на ось  $Z$   $m = +1/2$ , синие стрелки «вниз» обозначают количество ядерных спинов с проекцией  $m = -1/2$ . Поскольку спинов с  $m = +1/2$  больше, чем спинов с  $m = -1/2$ , то суммарная макроскопическая намагниченность определяется ядерными спинами с  $m = +1/2$  (фиолетовая стрелка) и имеет направление вдоль внешнего поля. .... 22
- Рисунок 5 – Схематическое изображение сдвига ядерных спиновых уровней энергии во внешнем магнитном поле из-за наличия квадрупольного взаимодействия. Частота центрального перехода остается без изменений, а частоты соседних переходов сдвигаются на величину  $\pm \omega Q'$ , которая пропорциональна величине квадрупольного взаимодействия в образце. .. 26
- Рисунок 6 – Зависимость двух вкладов в скорость спин-решеточной релаксации от магнитного поля (желтая линия): релаксация за счет сверхтонкого взаимодействия и спиновой диффузии к донору со скоростью  $1/T_D$  (горизонтальная пунктирная линия), и квадрупольная релаксация со скоростью  $1/T_Q$  [27]. ..... 29
- Рисунок 7 – Зависимость скоростей спин-решеточной релаксации от магнитного поля для объемных образцов, полученная с помощью методов спинового шума (SN) и поляризованной ФЛ (PL) (а), и образцов в микрорезонаторе с различными концентрациями донорной примеси (б). Вставка показывает поведение скоростей релаксации в магнитных полях до 20 Гс [28]. ..... 30
- Рисунок 8 – Схема формирования магнитного полярона: (а) немагнитная локализация электрона в кристаллической решетке (синими стрелками обозначены моменты одиночных магнитных

- атомов, красной стрелкой обозначен магнитный момент электрона); (б) потенциальная яма, соответствующая немагнитной локализации; (в) та же область решетки после образования магнитного полярона;  $\varepsilon$  – потенциальная яма, глубина которой определяется суммой энергий немагнитной (1) и магнитной (2) локализации [30]..... 35
- Рисунок 9 – Схематическая иллюстрация Зеемановского  $H_Z$ , спин-спинового  $H_{SS}$  и решеточного  $H_L$  резервуаров энергии для случаев слабых (а) и сильных (б) магнитных полей..... 38
- Рисунок 10 – Распределение ядерных спинов по Зеемановским (рассмотрен случай для ядерного спина  $I=1/2$ ) и по спин-спиновым уровням энергии для трех возможных комбинаций знаков спиновых температур: (а)  $\theta_Z > 0, \theta_{SS} > 0$ , (б)  $\theta_Z < 0, \theta_{SS} > 0$ , (с)  $\theta_Z < 0, \theta_{SS} < 0$ . Расщепление Зеемановских уровней вызвано спин-спиновыми взаимодействиями..... 38
- Рисунок 11 – Рекордно низкие ядерные спиновые температуры, полученные в металлах Cu, Ag и Rh в период с 1970-х по 2010 года [33]..... 40
- Рисунок 12 – Расчет среднего спина полярона  $j_T$  в зависимости от приведенной ядерной спиновой температуры  $t = \theta_N/\theta_C$  в рамках теории среднего поля (черная линия) и с учетом конечного числа ядерных спинов, входящих в полярон (цветные линии) [5]..... 41
- Рисунок. 13 – Схематическое изображение ядра с несферическим распределением заряда. Его можно представить как сферически-симметричное распределение заряда плюс положительный заряд и полоса отрицательного заряда, распределенная вокруг экватора. 43
- Рисунок 14 – (а) Схематическое изображение направления расщепления в КТ InAs/GaAs; (б) Расщепление ядерных спиновых уровней энергии на систему дублетов для спина  $I = 9/2$ . ..... 45
- Рисунок 15 – Эволюция сигнала спинового шума в процессе адиабатического размагничивания (диапазон полей от -50 Гс до 0 Гс) и намагничивания (диапазон полей от 0 до 50 Гс) для образца с МР (а), (д) и для объемного образца (с), (д). Черными пунктирными линиями обозначены подгоночные функции для экспериментальных данных на образце с МР, красными пунктирными линиями обозначены подгоночные функции с фиксированной величиной локального поля  $B_L = 2$  Гс, которое ожидается для объемного образца. .... 51
- Рисунок 16 – Поведение ядерной спиновой температуры  $\theta$  и ядерной намагниченности  $M$  в процессе адиабатического размагничивания. .... 56
- Рисунок 17 – Схема экспериментальной установки по спектроскопии отогрева ядерных спинов объемных образцов  $n$ -GaAs. Красными линиями показан ход луча накачки и сигнала ФЛ. Синим цветом обозначены катушки, которые создают постоянные магнитные поля вдоль ( $B_Z$ ) и поперек ( $B_x$ ) лучу накачки. Токи через эти катушки управляются с помощью двухканального источника питания (Power supply). Оранжевым цветом обозначены катушки переменного поля, которые создают поля также в двух направлениях: вдоль ( $B_{Z1}$ ) и поперек



- (( $B_{x1}$ ) лучу накачки. Частота и амплитуда переменного тока, идущего через них, регулируются с помощью двухканального функционального генератора (Function generator). ..... 60
- Рисунок 18 – Спектры ФЛ (сплошные линии) и поляризации ФЛ (полые кружки), измеренные с помощью CCD-камеры при температурах  $T = 10 - 20 \text{ K}$  для трех исследуемых образцов. Черная вертикальная линия показывает длину волны детектирования  $\lambda_{det} = 817 \text{ нм}$  и соответствующие ей степени поляризации ФЛ для трех образцов..... 61
- Рисунок 19 – Схема двухканального счетчика фотонов. Импульсы лавинного фотодиода PD подаются на дискриминатор и стробируются при помощи микросхемы 4-И, после чего считаются счетчиком. Опорный сигнал второй гармоники с фотоупругого модулятора задерживается аналоговым таймером 555 и определяет момент начала ворот. Окончание ворот задается микроконтроллером. Для этого на вход аппаратного прерывания подается сигнал первой гармоники фотоупругого модулятора. .... 63
- Рисунок 20 – Схематичное изображение синхронизации полупериодов фотоупругого модулятора (PEM) и ворот счетчика фотонов (photon counter). ..... 63
- Рисунок 21 – (а) Зависимость степени поляризации от ширины ворот. Стрелкой показана выбранная ширина ворот; (б) Измерение степени поляризации лампы накаливания со временем. Данный рисунок показывает стабильность сигнала во времени, а также точность определения степени поляризации. .... 64
- Рисунок 22 – Кривые деполяризации ФЛ (кривые Ханле), измеренные при длине волны детектирования  $\lambda_{det} = 816 \text{ нм}$  при мощностях накачки 5, 15 и 25 мВт (синие, зеленые и красные точки). Подгонка полученных кривых функциями Лоренца (синие, зеленые и красные линии). Зависимость полуширины на полувысоте функций Лоренца  $B_{1/2}$  от мощности накачки (вставка), из которой получено время жизни электронного спина  $T_S = 2.7 \text{ нс}$ . ..... 65
- Рисунок 23 – Пример двух-стадийного эксперимента, в котором вначале происходит поляризация ядерных спинов методом оптического охлаждения, а затем измерение получившегося ядерного поля. Для извлечения ядерного поля можно использовать (а) линейную подгонку второго измерительного этапа (серая штриховая прямая) или (б) подгонку, которая учитывает всю динамику поляризации (серая штриховая кривая). ..... 66
- Рисунок 24 – Примеры двух-стадийных кривых для времен охлаждения  $t_{cooling} = 2, 3$  и 4 минуты в продольном поле  $B_z = 100 \text{ Гс}$ . Зависимость ядерного поля от времени охлаждения (вставка, точки). Линейная подгонка получившейся зависимости (вставка, линия). ..... 68

- Рисунок 25 – Примеры двух-стадийных кривых для времени охлаждения  $t_{cooling} = 4$  минуты в продольных полях  $B_z = 57, 85, 114, 171$  и  $228$  Гс. Зависимость ядерного поля от величины продольного поля (вставка, точки)..... 69
- Рисунок 26 – Схематическое изображение четырех экспериментальных геометрий: (а), (b) поперечные геометрии; (с), (d) продольные геометрии. Направления переменного, статического магнитных полей и луча накачки указаны фиолетовой, голубой и красной стрелочками соответственно..... 71
- Рисунок 27 – (а) Схема четырехстадийного экспериментального протокола; (b) Экспериментальные кривые, полученные по четырехстадийному протоколу для образца S1. Измерялось изменение степени поляризации ФЛ  $\rho$  в зависимости от времени. Зеленая кривая соответствует эксперименту на частоте максимального поглощения в нулевом статическом магнитном поле  $f = 12$  кГц. Синяя кривая соответствует эксперименту в отсутствии переменного магнитного поля. Красные кривые являются подгоночными и строятся по формуле (2.7). ..... 75
- Рисунок 28 – Схема экспериментальной установки для экспериментов по адиабатическому размагничиванию ядерных спинов во вращающейся системе координат. .... 78
- Рисунок 29 – Спектр фотолюминесценции для 19.7 – нм квантовой ямы, полученный при температуре  $T = 5.5$  К (черная кривая). Спектр поляризации ФЛ изображен синими кружками. Штриховой вертикальной линией отмечена энергия детектирования, которая использовалась в измерениях..... 78
- Рисунок 30 – Протокол экспериментов по адиабатическому размагничиванию ядерных спинов во вращающейся системе координат, состоящий из трех стадий: (b) накачка образца циркулярно-поляризованным светом во внешнем наклонном магнитном поле  $B_{ext} = 7.5$  кГц (коричневая стрелка) и создание ядерной намагниченности  $M(As)$  (и  $M(Ga)$  для случая, когда изотопы Ga не стирались); (с) приложение  $\pi/2$  импульса (зеленая стрелка), который разворачивал среднюю ядерную намагниченность изотопа  $^{75}As$  на  $90^\circ$  (синяя стрелка). Красная стрелка обозначает направление ядерной намагниченности, созданной изотопами Ga в случае, если ядерное поле изотопов Ga не стирается на первой стадии; (d) приложение поддерживающего импульса, сдвинутого по фазе на  $\varphi = 90^\circ$  или  $\varphi = 270^\circ$  относительно  $\pi/2$  импульса. Он имеет параллельное направление относительно развернутой ядерной намагниченности во ВСК; далее на третьей стадии шло выключение поддерживающего импульса, измерение сигнала спада свободной индукции и его преобразование Фурье, представленного на вставке (е)..... 80
- Рисунок 31 – Пример временной зависимости степени поляризации ФЛ, измеренной по трехстадийному протоколу (синяя кривая): I) ЯСС в темноте в течении 250 с; II) оптическое

- охлаждение в продольном поле  $B_z = 100$  Гс в течение 10 с; III) Измерительный этап в поперечном поле  $B_x = 5.15$  Гс. Подгонка по формуле (2.10) обозначена красной штриховой линией..... 83
- Рисунок 32 – Экспериментальная зависимость величины ядерного поля  $B_{N0}$  от измерительного поля  $B_x$  (синие кружки). Подгонка полученной зависимости формулой (2.11) с величиной локального поля в качестве подгоночного параметра:  $B_L = 4$  Гс (красная кривая),  $B_L = 6$  Гс (синяя кривая) и  $B_L = 8$  Гс (зеленая кривая). Наилучшей считается подгонка величиной локального поля  $B_L = 6$  Гс. .... 84
- Рисунок 33 – Спектр поглощения (а) и спектр коррелятора (б) в нулевом магнитном поле охлажденной ЯСС образца *n*-GaAs, измеренный при температуре решетки  $T = 4.2$  К [6]. 87
- Рисунок 34 – Спектры поглощения в нулевом магнитном поле для образцов S1, S2 и S3. .... 88
- Рисунок 35 – Спектры поглощения в нулевом магнитном поле, измеренные в различных точках на поверхности образца S2. .... 89
- Рисунок 36 – Спектры поглощения для образца S2, измеренные в продольной экспериментальной геометрии, когда  $B_x || B_{x1}$ , для двух точек на образце: В (а) и А (б). .... 90
- Рисунок 37 – Спектры поглощения для образца S2, измеренные в поперечной экспериментальной геометрии, когда  $B_z \perp B_{x1}$ , для двух точек на образце: В (а) и А (б). .... 91
- Рисунок 38 – (а) Спектр поглощения, измеренный в точке А в поле  $B_z = 35$  Гс (черные кружки). Пики поглощения, соответствующие центральным переходам  $-1/2 \rightarrow 1/2$  для изотопов  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$  подогнаны функциями Лоренца (красная, зеленая и синяя сплошные линии). Сателлитные пики поглощения для изотопов  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$  также подогнаны функциями Лоренца (зеленые и синие штриховые линии); (б) Спектр поглощения изотопа  $^{75}\text{As}$ , измеренный в точке В в поле  $B_z = 100$  Гс (черные кружки). Пик поглощения, соответствующих центральному переходу  $-1/2 \rightarrow 1/2$ , подогнан функцией Лоренца (синяя сплошная линия). Сателлитные пики также подогнаны функциями Лоренца (синие штриховые линии); (с) Частотные положения пиков поглощения в зависимости от величины статического магнитного поля  $B_z$  для точки А, соответствующие центральным переходам  $-1/2 \rightarrow 1/2$  для изотопов  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$  (красные, зеленые и синие кружки соответственно). Красные, зеленые и синие сплошные линии, идущие через кружки, соответствуют рассчитанным гироманнитным отношениям для изотопов  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$ . Зеленые и синие кресты и полые кружки соответствуют частотным положениям сателлитных пиков для  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$ ; (д) Частотные положения пиков поглощения в зависимости от величины статического магнитного поля  $B_z$  для точки В, соответствующие центральным переходам  $-1/2 \rightarrow 1/2$  для изотопов  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$  (красные, зеленые и синие кружки соответственно).

- Красные, зеленые и синие сплошные линии, проходящие через кружки, соответствуют рассчитанным гиромагнитным отношениям для изотопов  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{75}\text{As}$ ..... 92
- Рисунок 39 – Спектры поглощения в нулевом магнитном поле для образца S1 в четырех различных точках на образце, полученные по четырех-стадийному экспериментальному протоколу. Спектры содержат два пика поглощения: на частотах  $f_1 = (4-7)$  кГц и  $f_2 = (12-22)$  кГц. Зависимости частотного положения каждого из пиков от точки на образце приведены штриховыми линиями. Для сравнения со спектрами поглощения от других образцов, спектр для образца S1 в точке point 2 приведен на рисунке 34 красным цветом.. 96
- Рисунок 40 – Ненормированные спектры поглощения для образца S1, измеренные в двух продольных экспериментальных конфигурациях: (a)  $\mathbf{B}_x || \mathbf{B}_{x1}$  и (b)  $\mathbf{B}_z || \mathbf{B}_{z1}$  ..... 97
- Рисунок 41 – Ненормированные спектры поглощения для образца S1, измеренные в двух поперечных экспериментальных конфигурациях: (a)  $\mathbf{B}_z \perp \mathbf{B}_{x1}$  и (b)  $\mathbf{B}_x \perp \mathbf{B}_{z1}$ . ..... 98
- Рисунок 42 – Зеемановские (красные линии) и квадрупольные + зеемановские (черные линии) уровни энергий ядерных спинов изотопа  $^{75}\text{As}$  во внешних полях (a)  $\mathbf{B}_x$  и (b)  $\mathbf{B}_z$ . Стрелочками показаны разрешенные типы переходов для четырех экспериментальных геометрий: по четыре типа переходов для каждой поперечной геометрии (тёмно-зелёные и светло-голубые стрелочки) и по два типа перехода для каждой продольной геометрии (светло-зеленые и синие стрелочки). ..... 99
- Рисунок 43 – Примеры спектров поглощения в поперечной геометрии  $\mathbf{B}_x \perp \mathbf{B}_{z1}$  для полей  $\mathbf{B}_x = 8.7, 19.3$  и  $29$  Гс (синие точки). Подгонки наблюдаемых пиков поглощения функциями Лоренца (зеленые линии). Красными линиями изображены суммарные подгоночные функции..... 100
- Рисунок 44 – Экспериментальные (цветные точки) и теоретические (цветные линии) спектры поглощения для двух поперечных (a), (b) и двух продольных (c), (d) конфигураций. Все спектры нормированы на интегральное поглощение. Черными, красными и зелеными пунктирными линиями показаны эволюции пиков поглощения для изотопов  $^{75}\text{As}$ ,  $^{71}\text{Ga}$  и  $^{69}\text{Ga}$  соответственно. .... 104
- Рисунок 45 – Трехмерное представление (colormap) расчетных спектров поглощения в двух поперечных: (a)  $\mathbf{B}_z \perp \mathbf{B}_{x1}$  и (b)  $\mathbf{B}_x \perp \mathbf{B}_{z1}$  и в двух продольных: (d)  $\mathbf{B}_z || \mathbf{B}_{z1}$  и (e)  $\mathbf{B}_x || \mathbf{B}_{x1}$  геометриях. Цветом показана рассчитанная интенсивность поглощения. Белыми кружками обозначены частотные положения экспериментальных пиков поглощения, полученные из подгонок спектров функциями Лоренца. Размеры кружков пропорциональны интегральной интенсивности поглощения каждого наблюдаемого в эксперименте пика. Справа от colormaps приведены графики зависимостей интегрального поглощения от каждого

- экспериментального (красные и черные символы) и рассчитанного (красные и черные линии) спектра в четырех геометриях: (с) двух поперечных и (f) двух продольных. .... 105
- Рисунок 46 – Ток, индуцируемый электронным пучком (черная линия), и его производная (синяя линия) в зависимости от положения пучка на сколе образца S1. Розовая вертикальная полоска обозначает размер области ОПЗ в окрестности р-п перехода между подложкой *p*-GaAs и образцом *n*-GaAs. .... 107
- Рисунок 47 – Экспериментальная зависимость величины ядерного поля (левая ось ординат) и величины ядерной спиновой температуры (правая ось ординат) развернутого изотопа <sup>75</sup>As от величины конечного поддерживающего поля **b**, в которое происходило адиабатическое размагничивание для сдвига по фазе  $\varphi = 90^\circ$  (синие кружки и кресты для ядерного поля и спиновой температуры соответственно) и  $\varphi = 270^\circ$  (красные ромбы и кресты для ядерного поля и спиновой температуры соответственно) при угле наклона внешнего поля  $\theta = 66^\circ$ . Синие и красные линии являются подгоночными кривыми, построенными по формуле (5.1) с величиной локального поля **B<sub>L</sub>** в качестве подгоночного параметра. .... 110
- Рисунок 48 – Часть кристаллической решетки GaAs вдоль кристаллографических направлений (а) [001] и (б) [110]. Выбранный для расчета атом As обозначен обведенным красным кружком. Его четыре соседних атома Ga обозначены обведенными синими кружками. Оставшиеся яркие красные и синие кружки обозначают четные нумерации атомов Ga и As (индекс **k**), а тусклые обозначают нечетные нумерации (индекс **k'**). .... 113
- Рисунок 49 – Зависимость квадрупольного вклада в локальное поле **B<sub>LQ</sub>** от угла  $\theta$  для трех величин азимутального угла  $\alpha = 0^\circ, 45^\circ$  и  $90^\circ$  (красные линии). Правые и левые вставки на каждом из трех графиков показывают экспериментальные данные по адиабатическому размагничиванию во ВСК для углов  $\theta = 55^\circ$  (синие символы) и  $\theta = 66^\circ$  (зеленые символы). Синие и зеленые линии – подгоночные кривые по формуле (5.1), из которых определялись величины локальных полей **B<sub>L</sub>**. .... 117

## Список таблиц

Таблица 1 – Гиромагнитные отношения ядер изотопов кристалла GaAs. ....	13
Таблица 2 – Значения констант квадрупольного взаимодействия для изотопов кристалла GaAs [22]. ....	24
Таблица 3 – Величины компонент тензоров для изотопов GaAs, которые описывают различные виды деформаций, приводящие к появлению ГЭП. *В таблице приведены величины компоненты $R_{14}$ из работы [24], но пересчитаны с учетом более новых квадрупольных констант из работы [22]. ....	26
Таблица 4 – Характеристики образцов <i>n</i> -GaAs, которые были исследованы с помощью методики спектроскопии отогрева. ....	59
Таблица 5 – Величины квадрупольных энергетических параметров для трех изотопов GaAs, полученные в результате подгонок рассчитанных спектров поглощения к экспериментальным. ....	106
Таблица 6 – Величины ядерной спиновой температуры, определенные из экспериментов по адиабатическому размагничиванию в нулевое поле. Жирным шрифтом выделены величины спиновой температуры, достигнутые в первой серии экспериментов при накачке только ядер изотопа $^{75}\text{As}$ . ....	111

SAINT PETERSBURG STATE UNIVERSITY

Manuscript copy

Litvyak Valentina Mihailovna

**EFFECTS OBSERVED IN SEMICONDUCTORS  
DURING DEEP COOLING OF NUCLEAR SPINS**

Specialization 1.3.8. Condensed matter physics

Dissertation is submitted for the degree of candidate of physical and mathematical sciences

Translation from Russian

Thesis supervisor  
Candidate of Physical and Mathematical Science  
Roman V. Cherbunin

Saint-Petersburg

2022

## Contents

	Page
<b>Introduction .....</b>	<b>139</b>
<b>Chapter 1. Nuclear spin system in bulk n-GaAs .....</b>	<b>144</b>
1.1 Formulation of the problem. Electron spin relaxation mechanisms in n-GaAs .....	144
1.2 Main types of interactions involving nuclear spins.....	146
1.2.1 Nuclear spin.....	146
1.2.2 Dipole-dipole interaction.....	148
1.2.3 Hyperfine interaction. Overhauser field and Knight field.....	149
1.2.4 Spin diffusion .....	151
1.2.5 Basic principles of nuclear magnetic resonance in solid. Zeeman interaction.....	152
1.2.6 Quadrupole interaction.....	156
1.3 Nuclear spin relaxation processes in bulk n-GaAs.....	160
1.3.1 Spin-spin relaxation.....	160
1.3.2 Spin-lattice relaxation .....	161
1.4 Nuclear spin polarization methods in semiconductors.....	164
1.4.1 Overhauser effect .....	164
1.4.2 Solid effect .....	165
1.4.3 Nuclear spin polarization by optical cooling in semiconductors .....	166
1.5 Nuclear magnetic ordering in semiconductors .....	167
1.6 Nuclear spin temperature .....	169
1.7 Nuclear spin polaron concept.....	173



1.8	Role of quadrupole interactions of nuclear spins in quantum dots, quantum wells and bulk samples .....	175
1.8.1	Role of quadrupole effects in quantum dots.....	176
1.8.2	Role of quadrupole effects in quantum wells.....	180
1.8.3	Role of quadrupole effects in bulk A3B5 materials.....	181
1.9	Influence of quadrupole effects on the local field .....	182
1.10	Nuclear spin warming up by oscillating magnetic field.....	184
1.11	Nuclear spin cooling in a rotating frame .....	186
<b>Chapter 2. Samples and experimental techniques .....</b>		<b>189</b>
2.1	Nuclear spin warm up spectroscopy.....	189
2.1.1	Samples .....	189
2.1.2	Measurement of photoluminescence polarization degree .....	190
2.1.3	Nuclear polarization detection by the Hanle effect.....	195
2.1.4	Nuclear spin warm up spectroscopy technique .....	200
2.2	Adiabatic demagnetization in a rotating frame .....	207
2.2.1	Sample and experimental setup.....	207
2.2.2	Experimental technique for nuclear spin adiabatic cooling in a rotating frame .....	209
<b>Chapter 3. Determination of the local field in bulk n-GaAs .....</b>		<b>212</b>
3.1	Use of nuclear spin warm up spectroscopy setup for measuring the local field.....	212
3.2	Experimental results .....	213
3.3	Conclusions .....	215
<b>Chapter 4. Absorption spectra of the nuclear spin system in bulk n-GaAs .....</b>		<b>216</b>
4.1	Absorption spectra at zero magnetic field.....	216
4.2	Analysis of absorption spectra for sample S2 .....	219
4.3	Analysis of absorption spectra for sample S1 .....	225

4.3.1	Absorption spectra at zero magnetic field.....	225
4.3.2	Absorption spectra in four experimental configurations. General form .....	226
4.3.3	Theoretical analysis of absorption spectra in external magnetic fields for sample S1 .....	229
4.4	Conclusions .....	238
<b>Chapter 5. Selective cooling of nuclear spins in GaAs quantum well using adiabatic demagnetization in a rotating frame .....</b>		<b>239</b>
5.1	Cooling of <sup>75</sup> As nuclear isotopes to record low spin temperatures by adiabatic demagnetization in a rotating frame .....	239
5.2	Calculation of spin-spin contribution to the local field.....	242
5.3	Determination of the quadrupole contribution to the local field.....	246
5.4	Conclusions .....	248
<b>Conclusion.....</b>		<b>249</b>
<b>Bibliography .....</b>		<b>251</b>
<b>List of Figures .....</b>		<b>256</b>
<b>List of Tables .....</b>		<b>262</b>

## Introduction

**Actuality.** Today, all electronics work on the transfer of an electron's charge (electric current). However, in addition to charge, an electron has such a fundamental characteristic as spin - its own moment of motion. The presence of a spin in an electron opens up the possibility of using spin as an alternative to electric current, which will make it possible to create new devices, for example, memory elements with a fast-switching speed, new methods of encoding information, etc. [1]. The phenomena associated with the use of the electron spin in the development of new devices are dealt with by spintronics, a popular and rapidly developing area of science today. One of the subjects of the study of spintronics is the study of the phenomena that arise in magnetically ordered structures when external static and oscillating magnetic fields are applied. The magnetic ordering can be different depending on the nature of the interaction between the electrons. Ferromagnetic and antiferromagnetic ordering of atoms is well known, and spin waves were also actively studied at the end of the 20th century. However, the process of transition of electron spins to the magnetic order is hindered by the relaxation process. There are various mechanisms for electron spin relaxation. In particular, nuclear spin fluctuations are one of the main factors affecting the electron spin relaxation time in semiconductors and semiconductor nanostructures. Electron spins precess in local fields that fluctuate in direction and amplitude, created by the lattice nuclei, as a result of which they lose their coherence [2, 3]. The influence of such fluctuations can be suppressed, and thereby increase the electron spin relaxation time, if the nuclear spin system (NSS) is cooled to temperatures at which transition of nuclear spins to magnetic order is possible. Such transition may be due to the dipole-dipole interaction between nuclear spins of the lattice. In this case, nuclear spin ordering is possible at spin temperatures of the order of nanokelvin [4]. But there is a concept of a nuclear spin polaron, in which the transition of nuclei to an ordered state can occur due to their hyperfine interaction with electron spins localized at donor centers [4, 5]. The spin temperature required for the formation of a nuclear spin polaron has a value of the order of  $10^{-7}$  K. Such a temperature can be experimentally obtained by the method of optical cooling followed by adiabatic demagnetization in the local field of nuclear spins  $B_L$  [6,7]. The local field limits the spin temperature to which it is possible to cool the NSS using adiabatic demagnetization. But in the presence of quadrupole interactions in the sample under study, the magnitude of the local field is determined by both dipole-dipole and quadrupole interactions. Therefore, quadrupole effects increase the value of the minimum possible nuclear spin temperature and thereby prevent the transition of nuclear spins to the polaron state. The ability to experimentally detect the manifestation of quadrupole interactions is an

important step towards obtaining minimum nuclear spin temperatures in semiconductors. Also, along with this task, it is necessary to be able to lower the nuclear spin temperature to the lowest possible values even in the presence of quadrupole interactions. This can be done using optical cooling and further adiabatic demagnetization in laboratory, as well as in rotating coordinate systems. Previously, spin temperatures of the order of microkelvin were achieved using adiabatic demagnetization in the laboratory coordinate system [6, 7], but they are not low enough for the formation of a nuclear spin polaron.

**Goal** of this work is to study of thermodynamic characteristics and magnetic fluctuations of the optically cooled spin system of arsenic and gallium nuclei in epitaxial  $n$ -GaAs layers, search for ways to achieve minimum nuclear spin temperatures.

For achieving this goal, it was necessary to solve the following **tasks**:

1. Create an experimental setup for deep cooling of nuclear spins of bulk  $n$ -GaAs crystals, including optical cooling followed by adiabatic demagnetization;
2. On the basis of this setup, implement the spectroscopy technique for heating nuclear spins by oscillating magnetic fields in four different configurations of oscillating and static magnetic fields;
3. To develop a technique for processing experimental data to obtain the values of spin temperatures achieved in this experiment, as well as to obtain the values of the rate of nuclear spins warming up by an oscillating magnetic field at different frequencies;
4. From the obtained dependences of the heating rates on the frequency of the oscillating magnetic field (from the absorption spectra), extract the information necessary to determine the type of quadrupole interaction;
5. Implement selective cooling of nuclear spins in a GaAs/AlGaAs quantum well in a rotating coordinate system. Calculate and compare with experiment contributions of the dipole-dipole and quadrupole reservoirs to the heat capacity of the spin system of arsenic nuclei. Estimate the efficiency of this method for achieving the spin temperatures required for the transition of nuclear spins to magnetically ordered state.

**Defended statements:**

1. In the epitaxial layers of bulk  $n$ -GaAs, there are uncontrollable deformations, which lead to the appearance of an additional contribution to the local nuclear field. This contribution is related to quadrupole interactions.
2. Quadrupole interaction of nuclei in bulk  $n$ -GaAs crystals in zero magnetic field leads to the appearance of three peaks in the absorption spectrum of an oscillating magnetic field by nuclear spins. For a given quadrupole splitting, the positions of the peaks are determined by their quadrupole constants. Measurement of the absorption spectra of nuclear spins depending on the

magnitude of the constant magnetic field at various mutual directions of the constant and oscillating magnetic fields makes it possible to determine the type and magnitude of the quadrupole interaction.

3. The spin-spin reservoir of arsenic nuclei in gallium arsenide in a strong external magnetic field follows the predictions of the nuclear spin temperature theory in a rotating coordinate system. In this case, the local fields are determined by the secular part of dipole-dipole and quadrupole interactions and depend on the direction of the external magnetic field.

**Science novelty.** All results presented are new. The following important results should be noted:

1. For the first time, the absorption spectra of cooled NSS were obtained in four experimental configurations for a bulk *n*-GaAs crystal.
2. A theoretical analysis of the obtained absorption spectra makes it possible to reliably determine the various contributions to the quadrupole interaction of the nuclear spins of the sample under study.
3. Selective cooling of the <sup>75</sup>As isotope of the GaAs/AlGaAs quantum well in experiments on cooling nuclear spins in a rotating coordinate system is presented for the first time. The resulting spin temperature  $\theta_N = 0.54 \mu K$  is record low.

**Science and practical value.** Experiments on the absorption spectra of cooled NSS in four experimental configurations and their theoretical processing make it possible to unambiguously determine the type and magnitude of the quadrupole interaction, which increases the local field and thereby prevents the achievement of the minimum possible spin temperatures. Knowing the source of the quadrupole interactions, one can look for ways to eliminate it and, by eliminating them, it will be possible to lower the temperature of the NSS to the values necessary for the transition of nuclear spins to magnetically ordered state.

**Reliability** is verified by the publication of original results in journals with high impact factor, as well as the discussion of the results at scientific seminars and at international conferences.

**Approbation of results.** The main results of the work were reported by the at the low-dimensional seminar of the Ioffe Institute, at seminars of Spin Optics laboratory (SPSU), as well as at conferences and working meetings:

1. V. M. Litvyak, R. V. Cherbunin, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin "Determination of the local field in the nuclear spin system of n-type GaAs". International conference "Modern nanotechnology and nanophotonics for science and industry"; Vladimir/Suzdal, November 9-13, 2017.

2. V. M. Litvyak, R. V. Cherbunin, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin "Kinetic and thermodynamic local fields acting on nuclear spins in semiconductors". International conference of the physics in semiconductors (ICPS); Montpellier, France, July 29 - August 3, 2018.
3. V.M. Litvyak, R.V. Cherbunin, V.K. Kalevich, K.V. Kavokin "Warm up spectroscopy applied to study nuclear spin fluctuations in semiconductors". International conference on physics of light-matter coupling in nanostructures (PLMCN); Suzdal / Moscow, July 2-6, 2019.
4. V. M. Litvyak, R. V. Cherbunin, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin "Approaching the nuclear spin polaron". Workshop ICRC TRR160; Dortmund, Germany, October 7-8, 2019.
5. V. M. Litvyak, R. V. Cherbunin, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin "Observation of different interactions in absorption spectra of a cooled nuclear spin system". Online Workshop ICRC TRR160; September 21-22, 2020.
6. V. M. Litvyak, R. V. Cherbunin, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin "Determination of the quadrupole splitting in bulk n- GaAs by warm- up spectroscopy" 28th International Symposium "Nanostructures: Physics and Technology" (NANO'2020); September 28 - October 2, 2021 (online format).
7. V.M. Litvyak, R.V. Cherbunin, V.K. Kalevich, M. Vladimirova, K.V. Kavokin "Development of spectroscopy of nuclear spin heating in bulk n-GaAs crystals". International conference PhysicA.SPb / 2021; St. Petersburg, October 18-22, 2021 (online format).

**Contribution of the author.** All experimental results on absorption spectra and their processing were obtained by the author personally under the guidance of Ph.D. Cherbunin R.V. In the work on the selective cooling of isotopes of nuclei in a GaAs/AlGaAs quantum well in a rotating coordinate system (Chapter 5), the author took part in experiments made in the laboratory of the Technical University of Dortmund (Germany), and performed calculations of the local fields of truncated dipoles - dipole and quadrupole interactions.

**Publications.** The main results on the topic of the dissertation are presented in 4 printed publications. All journals are indexed by the Web of Science and Scopus citation systems.

1. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kavokin K. V. and Kalevich V. K. Determination of the local field in the nuclear spin system of n - type GaAs // IOP Conf. Series: Journal of Physics. – 2018. – Vol. 951. – P. 012006.
2. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kavokin K. V. and Kalevich V. K. Determination of the Quadrupole Splitting in Bulk n - GaAs by Warm - Up Spectroscopy // Semiconductors. – 2020. – Vol. 54. – P. 1728-1729.

3. Kotur M., Tolmachev D. O., Litvyak V. M., Kavokin K. V., Suter D., Yakovlev D. R. and Bayer M. Ultra - deep optical cooling of coupled nuclear spin - spin and quadrupole reservoirs in a GaAs/(Al, Ga)As quantum well // *Communications Physics*. – 2021. – Vol. 4. - P. 193.
4. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kalevich V. K., Lihachev A. I., Nashchekin A. V., Vladimirova M. and Kavokin, K.V. Warm-up spectroscopy of quadrupole-split nuclear spins in n-GaAs epitaxial layers // *Physical Review B*. – 2021. – Vol. 104, issue 23. – P. 235201.

The thesis author has 4 more publications that are not related to the thesis topic.

**Thesis organization.** The thesis consists of an introduction, five chapters and a conclusion. The first Chapter provides a review of the literature on the main characteristics of the NSS in GaAs-based structures. The types of interactions involving nuclear spins, their relaxation mechanisms and polarization methods, as well as the foundations of the optical orientation of electron and nuclear spins are described in detail. The concept of nuclear spin temperature and the nuclear spin polaron model are also described. Part of the first chapter is devoted to the role of quadrupole interactions in semiconductor nanostructures. At the end of the chapter, the basic physical principles necessary to understand the original part of the thesis are presented in detail: nuclear spin warm up spectroscopy and experiments on adiabatic demagnetization in a rotating coordinate system.

The second Chapter examines the samples under study, experimental installations on which experiments were carried out on : nuclear spin warm up spectroscopy and on adiabatic cooling of nuclear spins in a rotating coordinate system, as well as experimental techniques and methods of processing experimental data.

The third Chapter presents original experimental results on the measurement of the local field in bulk *n*-GaAs.

The fourth Chapter presents original experimental results on nuclear spin warm up spectroscopy, which are, in particular, absorption spectra in four experimental configurations and a method for processing them. A theoretical model is also described, which was used to analyze the absorption spectra and determine the type and magnitude of the quadrupole interaction. At the end of the chapter, the results of such an analysis are presented.

The fifth Chapter presents original experimental results on selective cooling of isotopes of nuclei in a GaAs/AlGaAs quantum well, as well as calculations of local fields of truncated dipole-dipole and quadrupole interactions. In particular, obtaining record low nuclear spin temperatures is discussed.

The thesis consists of 127 pages with 49 figures and 6 tables. The list of references consists of 59 works.

## Chapter 1. Nuclear spin system in bulk *n*-GaAs

### 1.1 Formulation of the problem. Electron spin relaxation mechanisms in *n*-GaAs

The main motivation for studying spin effects in many works is the idea of using electron spin as an information carrier, as well as a switching element in logic. It is based on the possibility of controlling not the electron charge (as is done in micro and nanoelectronics), but its spin state. To achieve such practical goals, it is important to be able to control the relaxation processes of the electron spin.

GaAs-based structures have been the main objects of study of spin phenomena for almost 30 years. The relaxation processes of the electron spin, which are the main obstacle to the creation of spin memory, have been well studied in [3, 8]. In [3], using the example of electrons localized in quantum dots, it was shown that the average electron spin relaxes due to hyperfine interaction with nuclear spins. Relaxation takes place in two stages.

At the first stage ( $t < T_{\Delta} = 1 \text{ ns}$ ) the mean projection of the electron spin onto the pump axis relaxes due to the precession of the electron spin in the hyperfine field of frozen nuclear spin fluctuations. At this stage,  $2/3$  of the total electron spin polarization is lost. The rest  $1/3$  relaxes during  $T_N = 1 \mu\text{s}$  due to the dispersion of the precession frequencies of nuclear spins in an inhomogeneous Knight field in the limit of one quantum dot. This inhomogeneity arises due to the inhomogeneous distribution of the wave function of an electron localized in a quantum dot. However, the possibility of suppressing the relaxation process in frozen nuclear fluctuations by switching on an external longitudinal magnetic field is discussed.

For the case of bulk *n*-GaAs crystals, the electron spin relaxation processes are described in [8]. In slightly alloyed samples with donor impurity concentrations in the range from  $n_D = 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  to  $n_D = 2 * 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , corresponding to the metal-insulator transition (MIT), where the electron can be considered localized on the donor, the main process of spin relaxation, as in [3], is the precession of electrons in fluctuating hyperfine nuclear fields. For donor concentrations  $n_D > 2 * 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  electrons are already delocalized and relax along the spin through the Dyakonov-Perel mechanism. The dependence of relaxation times on donor concentration is shown in Figure 1.



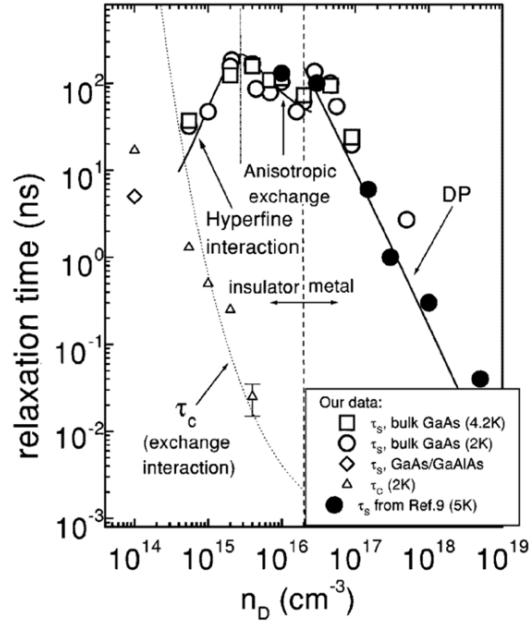


Figure 1 – Dependence of the relaxation time of the average electron spin on the donor impurity concentration in bulk  $n$ -GaAs samples. The symbols show the experimental results, the solid line shows the calculation. The dotted line shows the dependence of the correlation time of the electron spin  $\tau_c$  from donor concentrations [8].

To achieve the goal of increasing the electron spin relaxation time, it is reasonable to start with the cases where it has the maximum value. It can be seen from the figure that the maximum relaxation times are possible at donor concentrations  $n_D \sim 5 * 10^{15} \text{cm}^{-3}$ , where the relaxation mechanisms are the precession of the electron spin fluctuating nuclear fields and the anisotropic exchange interaction, and at  $n_D \sim 3 * 10^{16} \text{cm}^{-3}$ , where the electron spin relaxes according to the Dyakonov-Perel mechanism.

In this thesis, structures with donor concentrations  $n_D \sim 2 * 10^{15} \text{cm}^{-3}$  are selected, in which the main mechanism of relaxation of the electron spin is its interaction with fluctuating nuclear fields. One of the ways to increase the relaxation time of the electron spin in such structures is to suppress nuclear spin fluctuations. Suppression of fluctuations is possible during the transition of nuclear spins to magnetic order, which is established at nuclear spin temperatures of the order of fractions of a microkelvin. Lowering the spin temperatures to such values, as well as revealing the quadrupole interactions in the sample, which increase the local field and thereby limit the minimum possible nuclear spin temperature, are the subjects of study in the original part of this dissertation.

## 1.2 Main types of interactions involving nuclear spins

### 1.2.1 Nuclear spin

The foundations of nuclear magnetism were described in the work of F. Bloch in 1955 [9]. As you know, the atomic nucleus consists of nucleons: protons and neutrons, which move inside the nucleus along different trajectories. Nuclei with an even number of nucleons have integer spin ( $I = 0, 1, 2, \dots$ ). Nuclei with an odd number of nucleons always have half-integer spin ( $I = 1/2, 1, 3/2, \dots$ ). Those nuclei with an even number of neutrons and an even number of protons always have zero spin due to the mutual compensation of the moments of nucleons in the ground state. Nuclei that have nonzero spin have a magnetic moment  $\mu$ . Since nuclear spins are mainly considered through their interaction with different magnetic fields, it is more convenient to write the nuclear magnetic moment through its gyromagnetic ratio:

$$\mu = \gamma_N \hbar I, \quad (1.1)$$

where  $\hbar$  - Planck constant,  $\gamma_N$  – nuclear gyromagnetic ratio.

The gyromagnetic ratio is the coefficient of proportionality between the magnetic field  $B$  and nuclear precession frequency in it  $\omega$  and is the fundamental characteristic of the atomic nucleus:

$$\omega = \gamma_N B. \quad (1.2)$$

For nuclei isotope of the GaAs crystal, which is the subject of study in this thesis, the gyromagnetic ratios are given in Table 1.

Table 1 – Nuclear gyromagnetic ratios for GaAs isotopes.

Isotope	$\gamma_N, \frac{10^7 \text{ rad}}{\text{T} * \text{s}}$
$^{71}\text{Ga}$	8.2
$^{69}\text{Ga}$	6.4
$^{75}\text{As}$	4.5

Also, nuclei with a spin more than 1 have a quadrupole electric moment  $eQ$  ( $e$  – electric charge,  $Q$  – quadrupole constant, which characterizes the measure of the deviation of the nuclear charge distribution from spherical symmetry). The quadrupole moment of the nucleus interacts with the inhomogeneous electric field arising around the nucleus. Various factors can serve as sources of such an inhomogeneous field: deformation of the crystal lattice, external or internal electric field, or the structure of the crystal lattice.

The quantum state of the nucleus can be characterized by the eigenvalues of the total spin operator  $\hat{I}^2$ , which are equal to  $\hbar^2 I(I + 1)$ , as well as the eigenvalues of  $z$ -projection of the operator  $\hat{I}_z$ , which is equal to  $\hbar m$  ( $m$  – magnetic quantum number, which takes values from  $-I$  to  $I$ ). Operators of  $x$ - и  $y$ - nuclear spin projection  $\hat{I}_x$  and  $\hat{I}_y$  do not commute with operators  $\hat{I}^2$  и  $\hat{I}_z$  and it is more convenient to represent them in the form:

$$\hat{I}_{\pm} = \hat{I}_x \pm i\hat{I}_y . \quad (1.3)$$

Wherein  $\hat{I}_{\pm}$  operators are responsible for the transition of the nuclei from the state with a projection on the axis  $Z$   $m$  to the state with projection of  $(m \pm 1)$ . The eigenvalues of these operators are  $\hbar\sqrt{(I \mp m)(I \pm m + 1)}$ . In particular,  $\hat{I}_{\pm}$  operators are responsible for the transitions of nuclei between Zeeman energy levels under the action of oscillating magnetic fields [10].

For GaAs nuclear spin has value:  $I = \frac{3}{2}$ , and in an external magnetic field, nuclear spins are distributed over four energy levels, each of the levels is characterized by the projection of nuclear spins on the direction of the field:  $m = (-\frac{3}{2}; -\frac{1}{2}; \frac{1}{2}; \frac{3}{2})$ , and in the absence of an external magnetic field, the state of the nuclear spin is fourfold degenerate.

It is also worth noting the smallness of the nuclear magnetic moment in comparison with the electronic one (the nuclear magnetic moment is a thousand times smaller than the electronic one), as well as the smallness of the static nuclear magnetic susceptibility (nuclear magnetic susceptibility at

$10^{-6}$  -  $10^{-8}$  times less than electronic susceptibility) [11]. These facts indicate that the study of phenomena associated with nuclear magnetism is more complex than the study of electron magnetism.

The presence of an intrinsic magnetic moment in the nucleus allows it to participate in various types of interactions, which will be described in this chapter.

### 1.2.2 Dipole – dipole interaction

The efficiency of optical cooling is determined by interactions within the nuclear spin system. Nuclear spins in semiconductors interact through dipole-dipole interaction. Energy of interaction of the  $i$  –  $th$  and  $j$  –  $th$  nuclei, having spins  $I_i$  и  $I_j$  and located at a distance  $r_{ij}$  from each other, has the form:

$$W_{i,j} = \frac{\gamma_i \gamma_j \hbar^2}{r_{ij}^3} \left( I_i I_j - 3 \frac{(I_i r_{ij})(I_j r_{ij})}{r_{ij}^2} \right). \quad (1.4)$$

The energy of the  $i$  –  $th$  nucleus is expressed through the effective magnetic field  $B_{Li}$ , which is created on the  $i$  –  $th$  nucleus by neighboring nuclear spins:

$$E_i = \gamma_i \hbar I_i B_{Li}. \quad (1.5)$$

So, the  $i$  –  $th$  nuclear spin precesses in the field  $B_{Li}$  with a precession period equal to  $T_2 \sim 10^{-4}$  s for GaAs. Every time intervals equal to  $T_2$ , the magnitude and direction of the effective field  $B_{Li}$  change, and the time-averaged field is zero. Therefore, the mean square of this field is considered, which is no longer equal to zero. Such a field is called a local field. If we consider the nuclear spin system as a whole, and not a specific nucleus, then the mean square of the local field can be considered the sum  $B_L^2 = \sum_{i=1}^N \langle B_{Li}^2 \rangle$ , where  $N$  – number of nuclei. In bulk GaAs (which is the subject of research in this dissertation) the magnitude of the square of the local field is  $B_L^2 = 2.1 G^2$  [12].

The precession period of nuclear spins in local fields sets the order of magnitude of the spin-spin relaxation time  $T_2$ . During this time, an equilibrium state is established inside the NSS, which is described by the nuclear spin temperature. An important point is the fact that the local field also characterizes the contribution of spin-spin interactions to the heat capacity of the nuclear spin system

and thereby determines the minimum spin temperature  $\Theta_{Nf}$ , to which it is possible to cool nuclear spins by the method of adiabatic demagnetization from the initial magnetic field  $B_i$  to final magnetic field  $B_f$ , comparable to the local field  $B_L$  [13]:

$$B_i \Theta_{Nf} = \Theta_{Ni} \sqrt{B_f^2 + B_L^2}, \quad (1.6)$$

where  $\Theta_{Ni}$  – initial nuclear spin temperature achieved by optical cooling in the field  $B_i$ .

The adiabatic demagnetization method was used for deep cooling of the NSS in the original part of the thesis and will be discussed below.

### 1.2.3 Hyperfine interaction. Overhauser field and Knight field

There are two types of hyperfine interaction: anisotropic, due to the dipole-dipole interaction of the magnetic moments of the nucleus and the electron, and isotropic, due to the fact that the probability density of finding an electron at the location of the nucleus is not zero. In n-doped semiconductors, the anisotropic interaction is small and only the isotropic hyperfine interaction, which is called the contact Fermi interaction, plays a role.

The polarization (and relaxation) of nuclear spins in n-doped semiconductors occurs through the contact hyperfine interaction with electrons localized on donor impurities. So, when the sample is illuminated with circularly polarized light, photons transfer their angular momentum to electrons. In this case, due to the spin-orbit interaction, the electron spins are polarized. Spin-polarized electrons localized at donor impurities interact with nuclear spins through the Fermi contact interaction [12, 14]:

$$\hat{H}_{hf} = \frac{2}{3} \mu_0 g_0 \mu_b \gamma_N \hbar I S |\Psi(0)|^2, \quad (1.7)$$

where  $I$  – nuclear spin,  $S$  – electron spin,  $\mu_b$  – Bohr magneton,  $g_0$  – g-factor of electron,  $\gamma_N$  – nuclear gyromagnetic ratio,  $|\Psi(0)|^2$  – the square of the modulus of the electron wave function at the location of the nucleus.

Estimates show that in  $n$ -GaAs with one electron localized on a donor impurity, about 105 nuclear spins located in the region of electron localization interact through contact hyperfine interaction. This interaction is accompanied by mutual (flip-flop) flips of the electron and nuclear spins, which leads to the accumulation of nuclear spin polarization.

Non-zero mean nuclear polarization  $\langle I \rangle$  leads to the appearance of an effective nuclear magnetic field acting on the electron spin (Overhauser field):

$$B_N = \sum_i B_{i\_max} \langle I_i \rangle / I_i, \quad (1.8)$$

where the sum occurs over all isotopes.  $B_{i\_max}$  – Overhauser field for  $i$  –  $th$  isotope at 100% nuclear polarization. So, for GaAs,  $B_{i\_max} (^{71}\text{Ga}) = -7.8 \text{ kG}$ ,  $B_{i\_max} (^{69}\text{Ga}) = -9.1 \text{ kG}$ ,  $B_{i\_max} (^{75}\text{As}) = -18.4 \text{ kG}$  [14].

This method of nuclear spins polarization underlies the method of optical cooling in an external longitudinal magnetic field. In practice, in bulk  $n$ -GaAs using optical cooling, it is possible to obtain nuclear spin polarization of the order of 5%. But for low-dimensional structures, it is possible to achieve about 70% of nuclear polarization due to strong localization of electrons [15-17].

Similarly, nonzero polarization of electron spins creates an effective magnetic field (Knight field) acting on nuclear spins [12]:

$$B_e = b_{e,\alpha}(r)S = b_{e,\alpha}(0)S \exp\left(-\frac{2r}{a_b}\right), \quad (1.9)$$

where  $b_{e,i}(0)$  – the magnitude of the Knight field on a nucleus of type  $i$ ,  $r$  – distance from electron to nuclear,  $a_b$  – electron Bohr radius. For GaAs isotopes the value of  $b_{e,i}(0)$  takes the following values [12]:  $b_e^{75\text{As}}(0) = -220 \text{ G}$ ,  $b_e^{69\text{Ga}}(0) = b_e^{71\text{Ga}}(0) = -130 \text{ G}$ .

Average equilibrium nuclear spin  $\langle I \rangle$ , created as a result of polarization of nuclei by optically oriented electrons in an external magnetic field  $B_z$ , directed along this field. Nuclear field associated with the average nuclear spin (eq. (1.8)), also has a direction along the field  $B_z$  (figure 2). Knight field  $B_e$  has opposite direction to the mean electron spin (eq. (1.9)).

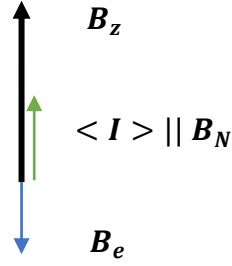


Figure 2 – Mutual directions of the external magnetic field  $B_z$  (black arrow), Overhauser field  $B_N$ , average nuclear spin  $\langle I \rangle$  (green arrow) and Knight field  $B_e$  (blue arrow).

#### 1.2.4 Spin diffusion

Due to the contact hyperfine interaction, only those nuclear spins that are directly in the region of electron localization on the donor are polarized and relaxed. The characteristic times of polarization and relaxation of such nuclei in the case of a shallow donor in an  $n$ -GaAs crystal are approximately  $T_{1e} \sim 0.1$  s [2]. Daniel Paget's 1982 work [18] experimentally proved the fact that nuclei outside the Bohr radius of an electron localized on a donor polarize and relax due to spin diffusion, which is carried out through dipole-dipole interaction. The experiments were performed on a bulk  $n$ -GaAs sample with a donor concentration  $n_d = 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  at the lattice temperature  $T = 1.7$  K using optically detectable nuclear magnetic resonance. The use of a crystal with a minimum amount of donor impurity and cooled to helium temperatures allowed the authors to experimentally study separately the spin relaxation of nuclei due to spin diffusion and separately due to the direct interaction of nuclear spins with an electron localized on the donor. Thus, in optical experiments, if the nuclear spins are polarized and then the pump is turned off, then first, during the time  $T_{1e}$ , the polarization of nuclear spins that are within the Bohr radius of a localized electron disappears, and then distant nuclear spins relax towards the donor. The spin diffusion process is characterized by the diffusion coefficient  $D = 10^{-13} \frac{\text{cm}^2}{\text{s}}$ , diffusion radius  $\delta = 140 \text{ \AA}$  [18] and lasts on the order of hundreds of seconds, depending on the concentration of donor impurities.

In work [7], carried out at about the same time as the work of D. Paget, using the example of a bulk  $n$ -GaAs crystal using the method of optical orientation, a fast polarization of nuclei was shown (in times  $T_{1e} \leq 10^{-4}$  s), located near the donor. This polarization moves away from the donor within the diffusion radius, forming a nuclear polarization front, which also proves the existence of spin diffusion.

### 1.2.5 Basic principles of nuclear magnetic resonance in solids. Zeeman interaction

The first successful detection of a nuclear magnetic resonance signal (NMR) on protons was made in 1945 by F. Bloch [19], and also, independently of him, E. Purcell and R. Pound on hydrogen atoms in water and solid paraffin [20]. Solid state NMR experiments were successfully carried out in [21]. Today NMR is one of the main methods for determining the structure and properties of substances. For a long time, it was not possible to obtain an NMR signal in a solid, because the signal was broadened due to the strong dipole-dipole interaction between the nuclear spins. Because of this, it was not possible to extract subtle effects from the NMR signal, such as electronic shielding. However, later, the pulsed NMR method was proposed, which made it possible to significantly narrow the lines.

To observe the NMR signal, it is necessary to place nuclei with a magnetic moment (such nuclei have nonzero spin) in a constant magnetic field and then apply an oscillating magnetic field at a certain frequency. Resonant absorption will be observed at the frequency of the Larmor precession of a nuclear isotope in a given magnetic field.

At static external magnetic field  $\vec{B} = (0, 0, B_z)$  the magnetic moment of the nucleus has the Zeeman energy, which corresponds to the Hamiltonian:

$$\hat{H}_z = -\gamma h \hat{I}_z B_z, \quad (1.10)$$

where  $\gamma$  – nuclear spin gyromagnetic ratio,  $\hat{I}_z$  – operator of the z-projection of the nuclear spin on the direction of the magnetic field  $B_z$ ,  $h$  - Planck constant.

As mentioned above, the energy of the nuclear spin in an external magnetic field can only take on discrete values. So, the degenerate energy level of the nuclear spin  $I = 3/2$  in an external magnetic



field  $\vec{B} = (0, 0, B_z)$  splits into four states, each of which corresponds to different values of spin projections onto the direction of the external magnetic field:  $m = \pm\frac{3}{2}, \pm\frac{1}{2}$  (Figure 3).

The energy difference between adjacent energy levels of the nuclear spin ( $\Delta m = \pm 1$ ) is equal:

$$\Delta E = \hbar\gamma_i B_z, \quad (1.11)$$

where  $\gamma_i$  – gyromagnetic ratio for  $i$  – th nuclear isotope.

Now, if an oscillating magnetic field at the resonant frequency is applied to a nuclear spin system in a constant magnetic field  $\omega_0$ :

$$h\omega_0 = \Delta E, \quad (1.12)$$

then this will cause transitions between neighboring energy levels of nuclear spins with a change in the projection on  $\Delta m = \pm 1$ . This is the essence of NMR.

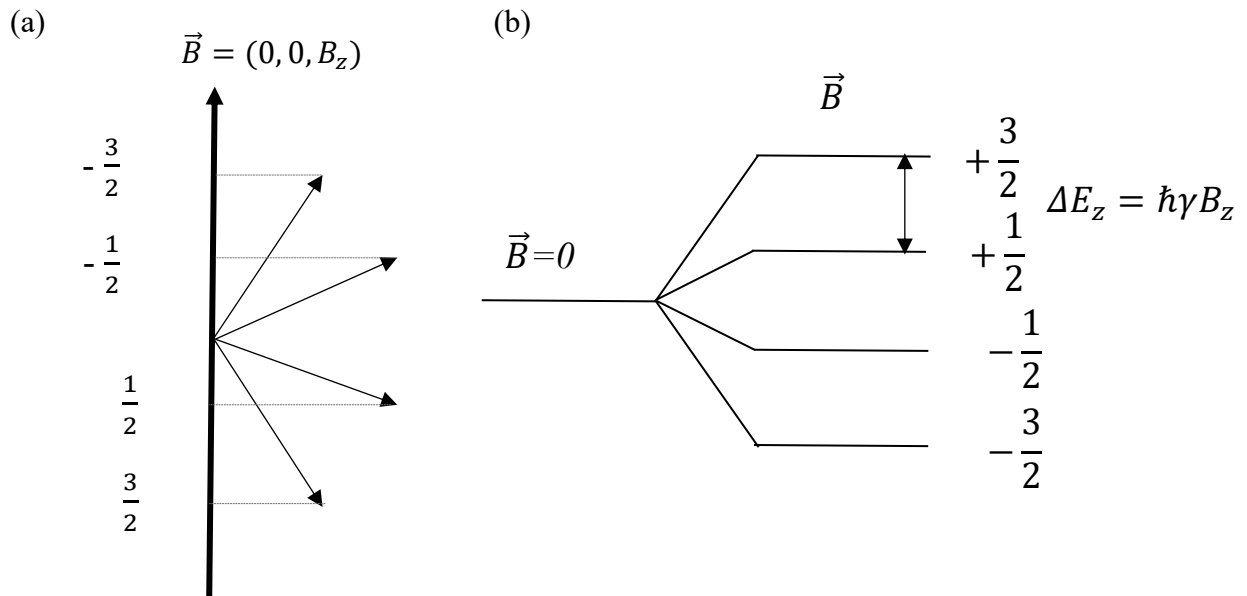


Figure 3 – (a) Schematic representation of four nuclear spin projections ( $m = -3/2, -1/2, 1/2$  и  $3/2$ ) at the external magnetic field direction  $\vec{B} = (0, 0, B_z)$  (b) Splitting the degenerate energy level into four levels with the values of the nuclear spin projections ( $m = -3/2, -1/2, 1/2$  и  $3/2$ ) at the external magnetic field  $\vec{B}$ .

Hamiltonian of the interaction of a nuclear spin with a magnetic moment  $\hat{\mu}$  with oscillating magnetic field  $B_1$  has a form [10]:

$$\hat{H}_1 = -\hat{\mu}\hat{B}_1 \cos(\omega t) \equiv \hat{H}_{01} \cos(\omega t), \quad (1.13)$$

$$\hat{H}_{01} = -\gamma h(\hat{I}_x B_{1,x} + \hat{I}_y B_{1,y} + \hat{I}_z B_{1,z}). \quad (1.14)$$

$\hat{I}_x$  and  $\hat{I}_y$  operators transfer the nuclear spin from the state with the value of the magnetic quantum number  $m$  to the states with the value  $(m \pm 1)$ . Therefore, in order to observe the transitions between the Zeeman energy levels, it is necessary to apply an oscillating magnetic field in the plane  $(x, y)$ . Wherein, if the transition occurs from the lower level to the upper, then it will be accompanied by the absorption of the energy of the oscillating field, and if from the upper level to the lower, then energy will be released. Moreover, these transitions are equally probable. But due to a small excess of spins at the lower level, the number of transitions from the lower level to the upper one per unit time will prevail, which will lead to the absorption of the energy of the oscillating field and the gradual equalization of the populations of nuclear energy levels.

The excess of spins at the lower level is associated with the statistical properties of the nuclear spin system. So, under conditions of thermodynamic equilibrium, the population of the  $i$  –  $th$  level decreases with an increase in its energy  $E_i$  according to law:

$$n_i = A \exp\left(-\frac{E_i}{kT}\right), \quad (1.15)$$

where  $A$  – normalization factor,  $k$  – Boltzmann constant,  $T$  – system temperature.

In an external magnetic field, a macroscopic magnetization of nuclear spins  $M$  appears. That is, the number of spins oriented along the direction of the external field is greater than those oriented against the field (Figure 4).

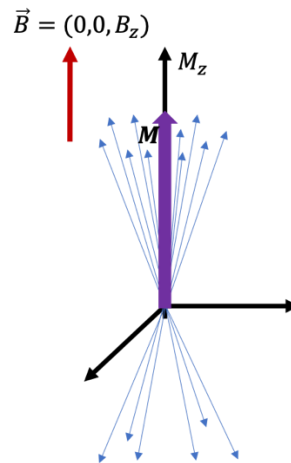


Figure 4 – Macroscopic magnetization  $M$  (purple arrow) for the case  $I = 1/2$ . Red arrow indicates the direction of the external magnetic field  $\vec{B}$ . Blue arrows “up” indicate the number of nuclear spins projected onto an axis  $Z$   $m = +1/2$ , blue arrows “down” denote the number of nuclear spins with the projection  $m = -\frac{1}{2}$ . Since there are more spins with  $m = +1/2$ , than spins with  $m = -1/2$ , the total macroscopic magnetization is determined by nuclear spins with  $m = +1/2$  (purple arrow) and has a direction along the external field.

Macroscopic magnetization in equilibrium is directed along the external magnetic field (Figure 4):

$$M = \chi B_z, \quad (1.16)$$

where  $\chi$  - static susceptibility of nuclear spins.

But even in strong magnetic fields of the order of hundreds of kG at high temperatures ( $T > 1$  K) the value of the static magnetization is small, i.e., the populations of the energy levels can be considered approximately the same (the NSS has almost zero polarization). To obtain significant static magnetization, it is necessary to cool the nuclear spin system to temperatures on the order of microkelvin. This can be done by optical cooling of nuclear spins in a constant longitudinal magnetic field. Such cooling is possible due to the hyperfine interaction of nuclear and electron spins localized at donor centers. If an oscillating magnetic field of a certain frequency is applied to the NSS which was cooled in this way, then the nuclear spins will absorb it. This is the essence of the optically detectable nuclear magnetic resonance (ODNMR) method. An oscillating magnetic field reduces the value of the static magnetization, which is accompanied by a change in the energy of nuclear spins. Since the total energy of the nuclear spin system cannot change, there is a reservoir with which the nuclear spins exchange energy. The crystal lattice (vibrations of atoms) serves as such a reservoir. Thus, the time

during which nuclear spins exchange energy with the lattice and, as a result, return to thermodynamic equilibrium, characterized by the longitudinal component of static magnetization, is called the time of longitudinal or spin-lattice relaxation and is denoted as  $T_1$ .

### 1.2.6 Quadrupole interaction

Nuclear quadrupole interaction is the interaction of the electric quadrupole moment of the nucleus  $Q_{jk}$  with a gradient of electric fields (EFG)  $\frac{\partial^2 V}{\partial x_j \partial x_k}$ . In semiconductors that contain nuclear isotopes with spins  $I \geq 1$ , the appearance of a quadrupole interaction is possible (the appearance of nonzero components of the EFG tensor). The general view of the Hamiltonian of the quadrupole interaction is expressed in terms of the components of the EFG tensor:

$$\hat{H}_Q = \sum_{j,k} \left( \frac{\partial^2 V}{\partial x_j \partial x_k} \right) Q_{jk}, \quad (1.17)$$

where  $V$  – electrostatic potential near the nucleus,  $j$  and  $k$  indexes can take values of the one of three Cartesian coordinates ( $x, y, z$ ),  $Q_{jk} = \frac{eQ}{6I(2I-1)} \left\{ \frac{3}{2} (I_j I_k + I_k I_j) - \delta_{jk} I(I+1) \right\}$  – nuclear quadrupole moment.

The nature of the electrostatic potential can be different. These can be both external influences on the sample (deformation, application of an electric field) and internal characteristics of the sample (voltage in the epitaxial structure due to lattice mismatch, built-in electric field). Depending on the nature of the electrostatic potential and the direction of the principal axis of the EFG tensor, the quadrupole energy of nuclear spins will be different.

In the case of cubic symmetry of the crystal (which the GaAs crystal studied in this thesis has), in the absence of external influences, all components of the EFG tensor are equal to zero. However, as mentioned above, deformations applied along different axes of the crystal, or an electric field (external or built-in) lead to the appearance of nonzero components of the EFG tensor.

Usually, for convenience, they pass into the axes ( $X, Y, Z$ ), in which the EFG tensor is diagonal and has components  $U_{ZZ}$ ,  $U_{XX}$  и  $U_{YY}$ . Then the Hamiltonian of the quadrupole interaction can be written:

$$\hat{H}_Q = \frac{eQU_{ZZ}}{4I(2I-1)} \left\{ 3\hat{I}_z^2 - I(I+1) + \frac{U_{XX}-U_{YY}}{2U_{ZZ}} (\hat{I}_+^2 + \hat{I}_-^2) \right\}, \quad (1.18)$$

where  $\hat{I}_\pm = \hat{I}_x \pm i\hat{I}_y$ ,  $Q$  – quadrupole interaction constant,  $e$  – electron charge. The Z axis will be considered the axis along which the structure is grown.

Each nuclear isotope has its own quadrupole coupling constant. For isotopes of the GaAs crystal, the quadrupole coupling constants are given in Table 2.

Table 2 –The values of the quadrupole interaction constants for the GaAs isotopes [22].

GaAs isotopes	$Q, 10^{-30}\text{m}^2$
$^{71}\text{Ga}$	10.7
$^{69}\text{Ga}$	17.1
$^{75}\text{As}$	31.4

The nonzero components of the EFG tensor can be expressed through the presence of elastic deformation, which is described by the second-rank tensor  $\varepsilon_{lm}$ , and the presence of an electric field  $F$  in the case of a piezoelectric crystal as follows:

$$V_{jk} = S_{jklm}\varepsilon_{lm} + R_{ijk}F_k, \quad (1.19)$$

where  $S_{jklm}$  – 4-rank gradient-elastic tensor,  $R_{ijk}$  – 3-rank tensor, connecting the EFG tensor with the electric field. Summation is performed over repeated indices. Elastic strain tensor  $\varepsilon_{lm}$  looks like this:

$$\varepsilon_{lm} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{yx} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} & \varepsilon_{zy} & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix}. \quad (1.20)$$

In a cubic crystal (which is GaAs), the form of the tensor  $\varepsilon_{lm}$  is simplified, because  $\varepsilon_{xy} = \varepsilon_{yx}$ ,  $\varepsilon_{xz} = \varepsilon_{zx}$ ,  $\varepsilon_{yz} = \varepsilon_{zy}$ .

4-rank gradient-elastic tensor  $S_{jklm}$  for crystals that have a zinc blende-type lattice, in Voigt notation it has the form:

$$S_{jklm} = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{12} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{11} & S_{12} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{12} & S_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} \end{pmatrix}, \quad (1.21)$$

where  $S_{11} = S_{xxxx} = S_{yyyy} = S_{zzzz}$ ,  $S_{12} = -\frac{S_{11}}{2}$  – diagonal components of tensor  $S_{jklm}$ ,  $S_{44} = S_{yzyz} = S_{xyxy} = S_{xzzx}$  – off - diagonal components of tensor  $S_{jklm}$ .

Electric field  $F$ , which can cause quadrupole interaction in piezoelectric crystals, has the form of a column vector:

$$\mathbf{F} = \begin{pmatrix} F_x \\ F_y \\ F_z \end{pmatrix}. \quad (1.22)$$

Let's introduce  $C_{jklm}$  – stiffness tensor, where  $j, k, l, m = (x, y, z)$ . Then the tensor of mechanical stresses  $\sigma_{lm}$  expressed in terms of the stiffness tensor and elastic strain tensor:

$$\sigma_{lm} = \sum_{jk} C_{jklm} \varepsilon_{jk}. \quad (1.23)$$

For crystals with a zinc blende structure, the tensor  $C_{jklm}$  has the following nonzero components:  
 $C_{11} = C_{xxxx} = C_{yyyy} = C_{zzzz}$  – diagonal components of  $C_{jklm}$ ,  $C_{12} = C_{xxyy} = C_{xxzz} = C_{yyzz} = C_{zzxx} = C_{yyxx} = C_{zzyy}$  and  $C_{44} = C_{xyxy} = C_{xzzx} = C_{yzyz}$  – off-diagonal components of  $C_{jklm}$ .  
 The values of the nonzero components of these tensors for the GaAs crystal are given in Table 3.

Table 3 – Values of tensor components for GaAs isotopes, which describe various types of deformations leading to the appearance of EFG. \* The table shows the values of the  $R_{14}$  component from [24], but recalculated taking into account the newer quadrupole constants from [22].

Isotope	$^{71}\text{Ga}$	$^{69}\text{Ga}$	$^{75}\text{As}$
Tensor components			
$S_{11} * 10^{21}, \frac{V}{m^2}$ [23]	-22	-22	24.2
$S_{44} * 10^{21}, \frac{V}{m^2}$ [23]	9	9	48
$R_{14} * 10^{10}, cm^{-1}$ [24]*	2.1	2	1.9
$C_{11} * 10^{11}, \frac{H}{m^2}$ [25]	1.2	1.2	1.2
$C_{12} * 10^{11}, \frac{H}{m^2}$ [25]	0.54	0.54	0.54
$C_{44} * 10^{11}, \frac{H}{m^2}$ [25]	0.62	0.62	0.62

Any kind of deformation that leads to a quadrupole contribution to the energy of nuclear spins can be written through these tensors.

It should be noted that the quadrupole interaction in the sample leads to an increase in the local field [26], as well as to a shift of the Zeeman energy levels and, as a consequence, to the appearance of quadrupole satellites in the spectra of nuclear quadrupole resonance (Figure 5).

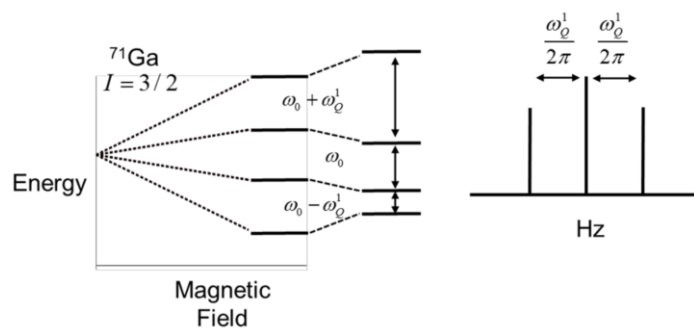


Figure 5 – Schematic representation of the shift of nuclear spin energy levels in an external magnetic field due to the presence of quadrupole interaction. The frequency of the central transition remains unchanged, and the frequencies of neighboring transitions are shifted by the amount  $\pm\omega_Q'$ , which is proportional to the magnitude of the quadrupole interaction in the sample.

### 1.3 Nuclear spin relaxation processes in bulk *n*-GaAs

If the NSS is taken out of equilibrium, then it will come back to the equilibrium state due to relaxation processes. Relaxation processes bring nuclear spins into equilibrium within the NSS itself, as well as into equilibrium with the environment. These processes take place at different times and depend on many factors.

Deep cooling of nuclear spins is limited, as mentioned above, by the magnitude of the local field, as well as by the pumping efficiency and relaxation processes of nuclear spins during the stage of adiabatic demagnetization. Therefore, it is important to know and understand the mechanisms by which, in particular, nuclear spin relaxation occurs in the crystal under study, as well as to know its characteristic times.

At the beginning of the first chapter, two relaxation times of nuclear spins were already introduced: the spin-spin relaxation time  $T_2$  and the spin-lattice relaxation time  $T_1$ . In this section, they will be considered in more detail.

#### 1.3.1 Spin-spin relaxation

The fastest relaxation process takes place inside the NSS. It is called spin-spin relaxation and is due to the dipole-dipole interaction between nuclear spins. In zero magnetic field, spin-spin relaxation is characterized by the time  $T_2 \sim 10^{-4}$  s for GaAs [14]. During this time, the nonequilibrium angular momentum of nuclear spins relaxes and a Boltzmann distribution over energy levels in local fields is established, which is characterized by a certain nuclear spin temperature. If we place the NSS in an external magnetic field, then the nuclear spins will also be distributed according to the Boltzmann statistics, but already between the Zeeman energy levels. In this case, the spin-spin relaxation time will



increase with an increase in the magnetic field, i.e., nuclear spins will take longer to come to thermodynamic equilibrium.

In this case, in an external magnetic field much larger than the local fields, the transverse component of the mean nuclear spin relaxes on the time scale of  $T_2$  while the longitudinal component is retained. Also, if the nuclear spin polarization was polarized using optical cooling in an external magnetic field, then after the stage of adiabatic demagnetization (after turning off the magnetic field to zero), the nuclear spin polarization disappears in  $T_2 \sim 10^{-4}$  s, but the achieved in as a result of optical cooling, the nuclear spin temperature, which is then equalized with the lattice temperature during the spin-lattice relaxation times.

### 1.3.2 Spin-lattice relaxation

During spin-lattice relaxation time  $T_1$  the NSS exchanges energy with the environment. The times of such a relaxation process depend on many factors (type of doping, concentration of impurities, lattice temperature, external field strength, presence or absence of pumping, etc.) and can vary from several seconds (which is typical for  $p$ -type crystals) to several hours. Let us dwell in more detail on the features of spin-lattice relaxation in bulk  $n$ -GaAs.

For bulk semiconductors at dielectric phase (with donor concentration  $\sim 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ) the main mechanism of spin-lattice relaxation of nuclear spins is the hyperfine interaction of nuclei with electrons on donors. In [7], for a bulk  $n$ -GaAs crystal, the formation of a temperature front of nuclear polarization was observed, the presence of which is possible provided that the nuclear spins near the donor are first optically polarized and then warmed up (relaxed) due to hyperfine interaction with an electron localized on the donor. In this work, for deep cooling of nuclear spins, we used the method of optical cooling with further adiabatic demagnetization. In [18], it was also shown by the optically detectable NMR (ODNMR) method that there are two components of spin-lattice relaxation: the fast component, which is determined by the relaxation of nuclei located within the wave function of an electron on a donor due to hyperfine interaction with this electron, and a slow component, which is formed by nuclear spins outside the electron wave function (they lose their polarization due to spin diffusion to the nuclei under the donor). Moreover, it was experimentally proved in [18] that these two components of spin-lattice relaxation can be studied separately. Thus, papers [7] and [18] show that in semiconductors in the

dielectric phase, the energy relaxation of nuclear spins is due to their hyperfine interaction with an electron localized on the donor.

The theory of spin-lattice relaxation of nuclear spins in the absence of pumping in insulating *n*-GaAs crystals was developed in [27]. The authors studied the relaxation rate as a function of the external magnetic field by the method of polarized PL with dark gaps, during which a static magnetic field was applied. With the help of such experiments, the authors obtained a result that cannot be explained using the previously proposed heating mechanism due to the spin diffusion of nuclei to the donor: the rate of nuclear spin heating drops sharply with an increase in the external magnetic field (Figure 6).

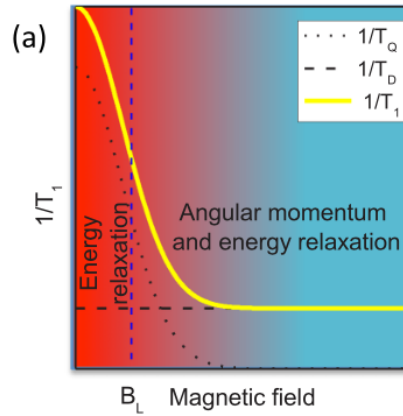


Figure 6 – Dependence of two contributions to the spin-lattice relaxation rate on the magnetic field (yellow line): relaxation due to hyperfine interaction and spin diffusion to the donor at a rate  $1/T_D$  (horizontal dashed line), and quadrupole relaxation at a rate  $1/T_Q$  [27].

Such a nontrivial dependence of the relaxation rate is explained by the presence of a quadrupole interaction of nuclear spins with fluctuating electric fields, which arise due to electron hopping from donor to donor at a low lattice temperature, or due to electron hopping from donors to the conduction band at high temperatures in the absence of pumping. So, fluctuations of electric fields cause an additional flow of energy in the NSS  $F_Q$ . In this case, this relaxation mechanism disappears with an increase in the magnetic field, since the rate of quadrupole relaxation  $\frac{1}{T_Q} = \frac{F_Q}{C_N \beta}$ ,  $F_Q$  does not depend on the field, and the heat capacity of the NSS  $C_N$  is proportional to the square of the field:  $C_N \sim B^2$ .

In [28], the spin-lattice relaxation of nuclear spins was also studied, but already in a wide range of donor impurity concentrations in *n*-GaAs crystals. For this, the authors used three independent methods for determining the dependence of the spin-lattice relaxation rate on the magnetic field: the method of polarized PL with dark gaps for bulk samples (as in [27]), and methods of spectroscopy of spin noise and Faraday rotation for samples with microcavities. All three methods allow one to study the relaxation of nuclei in the absence of photoproduced charge carriers.

It turned out that the decrease in the relaxation rate with increasing magnetic field is characteristic for the entire studied range of donor impurity concentrations (Figure 7). In weak fields  $B < B_L$ , for donor concentration of  $n_d \leq 2 * 10^{16} cm^{-3}$  the main contribution to the relaxation rate is made by the quadrupole interaction of nuclear spins with fluctuating electric fields, described in [27]. For metal samples ( $n_d > 2 * 10^{16} cm^{-3}$ ) the nature of weak fluctuations that accelerate the relaxation of nuclear spins is still unknown.

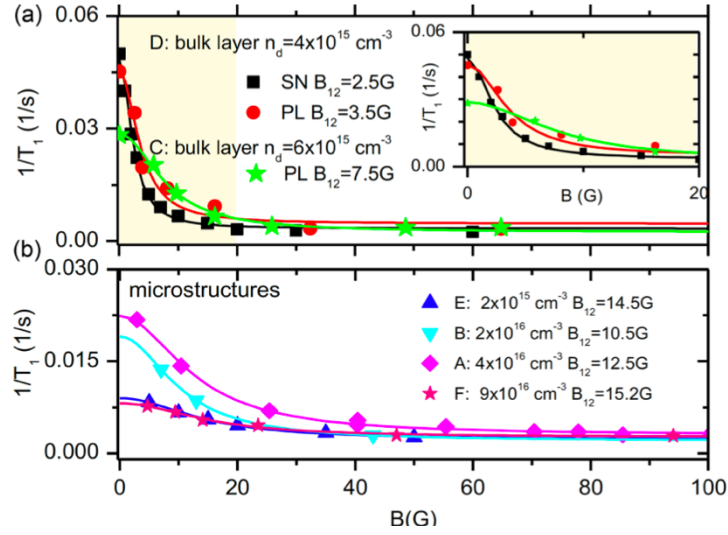


Figure 7 – Dependence of the spin-lattice relaxation rates on the magnetic field for bulk samples, obtained using the spin noise (SN) and polarized PL (PL) methods (a), and samples in a microcavity with different donor impurity concentrations (b). The inset shows the behavior of relaxation rates in magnetic fields up to 20 G [28].

In strong magnetic fields, the rate of quadrupole relaxation  $\frac{1}{T_Q}$  does not play a role for any donor concentration. For insulating samples ( $n_d < 5 * 10^{15} cm^{-3}$ ) relaxation occurs due to the hyperfine interaction of nuclei with electrons and due to spin diffusion. For concentrations  $5 * 10^{15} cm^{-3} < n_d < 10^{16} cm^{-3}$  the relaxation rate is less than predicted by the diffuse model, and the reason for this is not yet clear. For donor concentration  $n_d > 10^{16} cm^{-3}$  the spin relaxation is limited by the diffusion of nuclei towards donor pairs at low temperatures, and at temperatures  $T > 5K$  the nuclear spin relaxation is determined by the Korringa mechanism.

## 1.4 Nuclear spin polarization methods in semiconductors

Today, there are a number of methods that allow one to study the properties of substances with a nonzero nuclear spin in a solid. Among them, one can single out nuclear magnetic resonance (NMR) spectroscopy, which has a wide applied character and the method of optical orientation of nuclear spins, which makes it possible to study the electron-nuclear effects associated with the magnetization of nuclei.

### 1.4.1 Overhauser effect

The Overhauser effect is a way of nuclear spins polarization in metals upon saturation of transitions between the energy levels of electrons in a magnetic field. In a stationary state in the presence of an external magnetic field, the condition is satisfied [29]:

$$W_{m,m+1}N_m n_{\uparrow} = W_{m+1,m}N_{m+1}n_{\downarrow}, \quad (1.24)$$

where  $W_{m,m+1}$  - probability of simultaneous flip of electron and nucleus spins,  $W_{m+1,m}$  - probability of reverse process,  $N_m$  - the population of the nuclear level with the  $m$ -projection of the spin on the direction of the magnetic field,  $n_{\uparrow}$  and  $n_{\downarrow}$  - population of electron spin levels with spin projections along and against the field, respectively.

For the ratios of the transition probabilities from the previous equation we have:

$$\frac{W_{m,m+1}}{W_{m+1,m}} = \frac{N_{m+1}n_{\downarrow}}{N_m n_{\uparrow}} = e^{\frac{\Delta E_N + \Delta E_e}{kT}}, \quad (1.25)$$

where  $\Delta E_N$  и  $\Delta E_e$  - Zeeman splitting of nuclear and electronic spin energy levels.

Thus, in a state of equilibrium, the equilibrium polarization of nuclear spins  $\frac{N_{m+1}}{N_m} = e^{\frac{\Delta E_N}{kT}}$  is close to zero. But if an oscillating magnetic field at the resonant frequency of electronic transitions is applied,

this will lead to equalization of the populations of the electronic levels:  $n_{\uparrow} = n_{\downarrow}$  and, because  $\Delta E_e \gg \Delta E_N$  (due to the fact that the Bohr electron magneton is  $10^3$  times larger than the nuclear), then:

$$\frac{N_{m+1}}{N_m} = e^{\frac{\Delta E_N + \Delta E_e}{kT}}. \quad (1.26)$$

That is, it is possible to obtain nuclear spin polarization significantly exceeding its equilibrium value.

### 1.4.2 Solid effect

One of the methods for the dynamic polarization of nuclear spins in a solid is the solid effect. In the 1960s, A. Abraham and his colleague W. Proctor experimentally proved the solid effect in a solid by the example of a LiF crystal. Also, the essence of this effect is described in detail in [13] using the example of  $^{19}\text{F}$  nuclear spins of the  $\text{CaF}_2$ . In these experiments, the sample was cooled to a temperature  $T = 0.7$  K and placed in a constant magnetic field  $B = 2.7$  T. Under such conditions, the nuclear spins had almost zero polarization, and the electron spins, due to their large magnetic moment, were almost completely polarized. Then an oscillating magnetic field was applied to the sample at a frequency equal to the difference between the Larmor frequencies of the electron and nuclear spins. It induces flip-flop transitions. Thus, one mutual flip of the electron and nuclear spins occurs due to the absorption of a quantum of energy of an oscillating magnetic field  $h(\omega_e - \omega_N)$ , где  $\omega_e$  и  $\omega_N$  – frequencies of Larmor precession of electron and nuclear spins, respectively. The electron spin quickly loses its direction and returns to its original state, while giving a quantum of energy to the lattice  $h\omega_e$ , while the nuclear spin does not have time to lose its new direction due to the long spin-lattice relaxation time. This process is repeated, and nuclear spin polarization near the electron accumulates.

Also, a feature of this method of dynamic polarization of nuclei is the possibility of realizing a negative spin temperature when the nuclei are polarized against the direction of the external magnetic field. For this, the sample is irradiated with an oscillating magnetic field with a total energy  $h(\omega_e + \omega_N)$ . Initially directed in one direction, the electron and nuclear spins (along the external field) will simultaneously change their direction to the opposite. Then, as in the first case, the electron spin will

quickly return to its original direction, and the nuclear polarization will eventually be directed against the field.

### 1.4.3 Nuclear spin polarization by optical cooling in semiconductors

As noted above in Section 1.1., Nuclear spins can be polarized by placing the sample in an external magnetic field. However, it is rather difficult to achieve significant nuclear spin polarization by this method: it is necessary to apply magnetic fields of the order of several Tesla, since nuclear spins have a weak static susceptibility. And even in this case, the nuclear polarization will be close to zero. The possibility of achieving significant polarization of nuclear spins in bulk semiconductors in weak magnetic fields is provided by the method of optical cooling of nuclear spins, which is possible due to the phenomenon of optical orientation of spins. The term optical orientation refers to the polarization of electron spins in conducting materials due to their interaction with circularly polarized light, which transfers angular momentum from photons to electrons. Due to the spin-orbit interaction, the electrons acquire a preferential orientation of their own angular momentum relative to the exciting beam. The very phenomenon of optical orientation has a rich theoretical and experimental history, which begins with the first experiments on depolarization of the luminescence of metal vapors in a magnetic field (1924). Later, these experiments were given a theoretical explanation, and the depolarization of luminescence in a transverse magnetic field was named after Wilhelm Hanle (Hanle effect). Optical orientation underlies the method of optical cooling of nuclear spins through the hyperfine interaction of nuclei with optically polarized electrons. That is, we can talk about the optical orientation of nuclear spins by means of electrons. In the dissertation, nuclear spins were polarized using this method and this process is called the optical cooling method. Optical cooling of nuclear spins will be described in more detail in Chapter 2 using original experimental data as an example.

## 1.5 Nuclear magnetic ordering in semiconductors

To date, there are many known phenomena associated with the ordering of electronic and nuclear spins in various materials. One of the most famous are the transitions of substances to the ferromagnetic and antiferromagnetic states. Such transitions are explained by the presence of a magnetic dipole moment in the electron, which creates a magnetic field around it. For the manifestation of one or another magnetic ordering, it is necessary that the atoms of the substance have an unfilled electron shell (i.e., that some of the electrons have uncompensated magnetic moments). Such materials include, for example, 3d metals: Fe, Co and Ni, in which the 3d electron shell is not completely filled. Also, transitions to the magnetic order are possible at certain temperatures of the crystal lattices. So, in a paramagnet at a temperature below the Curie temperature, spontaneous magnetization occurs and the paramagnet becomes a ferromagnet. Similarly, the antiferromagnetic state is formed at temperatures below the Néel temperature. These two temperatures depend on the substances and are quite high. For example, cobalt has the highest Curie temperature ( $T_c = 1388\text{ K}$ ).

A magnetic polaron in semi-magnetic semiconductors is also another example of an ordered state of electron spins. For example, the formation of a magnetic polaron is possible in a solid solution  $Cd_{1-x}Mn_xTe$ , where the Mn atoms have only a half-filled 3d shell, which means a nonzero magnetic moment (the largest of all the atoms of the iron group). A magnetic polaron is formed in two stages [30]. First, a free electron is localized at a donor impurity or a random potential of the solid solution. Then, the magnetic moments of Mn atoms surrounding the localized electron are aligned in the direction of the magnetic moment of the electron (Figure 8).

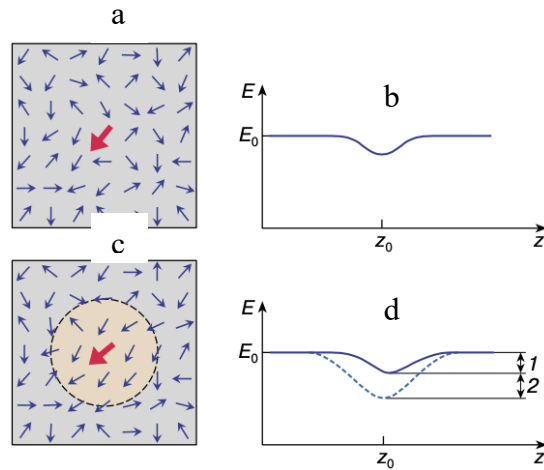


Figure 8 – Scheme of the formation of a magnetic polaron: (a) nonmagnetic localization of an electron in a crystal lattice (blue arrows indicate the moments of single magnetic atoms, red arrows indicate the magnetic moment of an electron); (b) potential well corresponding to non-magnetic localization; (c) the same region of the lattice after the formation of the magnetic polaron; d is a potential well, the depth of which is determined by the sum of the energies of nonmagnetic (1) and magnetic (2) localization [30].

The formation of a magnetic polaron is limited by the following conditions. An increase in the concentration of magnetic Mn atoms leads to the formation of antiferromagnetic pairs instead of polarons. An external magnetic field aligns the magnetic moments of Mn along its own direction, and not along a localized electron. It should also be noted that a magnetic polaron is formed at sufficiently high lattice temperatures (about 4 K), since this temperature is sufficient for the thermal energy of the disorientation of the magnetic moments  $kT$  was less than the exchange interaction between a localized electron and magnetic atoms. This temperature is easily achieved in experiment. There are also a number of works in which the formation of a magnetic polaron has been experimentally studied, for example, works [31, 32]. The lowest temperatures are required for experimental observation of ordered states of nuclear spins, since due to the smallness of nuclear magnetic moments, the interaction energy between them is small and therefore very low temperatures are required to suppress their thermal energy. However, in the 1970s, A. Abraham and co-authors observed the antiferromagnetic ordering of the nuclear spins of isotopes  $^{19}\text{F}$  at dielectric  $\text{CaF}_2$ . And in the 1980s, a group of scientists from Finland and Denmark experimentally observed nuclear spin order in metals [13]. Thus, according to [13], in copper, nuclear spins form an antiferromagnetic order at spin temperatures  $\theta_N(\text{Cu}) = 58 \text{ nK}$ , and for silver the antiferromagnetic structure is formed at even lower temperatures  $\theta_N(\text{Ag}) = 560 \text{ pK}$ .

In semiconductor structures, nuclear magnetic ordering can be due to the dipole-dipole interaction between nuclear spins. In this case, it is necessary to cool the nuclear spins to temperatures



on the order of nanokelvin. However, such low spin temperatures by the method of optical cooling followed by adiabatic demagnetization have not yet been achieved, and to date, nuclear magnetic ordering has not been experimentally discovered for semiconductors. However, there is a well-developed theoretical concept of the nuclear spin polaron, which predicts the existence of polaron states in n-doped semiconductors by analogy with magnetic polarons, which, as mentioned above, have already been experimentally discovered. In the following sections, the basics of the concept of a nuclear spin polaron will be presented. The concept of nuclear spin temperature will also be introduced, which is necessary to explain not only the concept of a nuclear spin polaron, but also to understand the basic physical principles of the nuclear spins warm up spectroscopy, which will be presented in the original part of the thesis.

## 1.6 Nuclear spin temperature

According to paper [2], the nuclear spin temperature characterizes the equilibrium state of a system of interacting spins isolated from the lattice, which is established in a time  $T_2$ :

$$T_2 \approx \frac{h}{\gamma_N B_L}. \quad (1.27)$$

On the scale of times  $T_2 < t < T_1$ , where  $T_1$  – nuclear spin-lattice relaxation time, the NSS can be considered isolated from the lattice and characterized by its own spin temperature  $\theta_N$ .

In the absence of external magnetic fields, the energy levels of the NSS are split by a random local field created by nuclear spins on top of each other. Nuclear spins are distributed by energy levels according to Boltzmann statistics:

$$\frac{N_m}{N_{m+1}} = e^{\frac{E_{dd}}{k_b \theta_N}}, \quad (1.28)$$

where  $E_{dd}$  – the energy of the dipole-dipole interaction.

In the absence of external influences on the NSS,  $\theta_N = \theta_L$ , where  $\theta_L$  – lattice temperature.

It is possible to achieve a nuclear spin temperature different from the lattice temperature by optical cooling in an external longitudinal magnetic field. If we then remove external influences on the NSS (turn off the pumping and the magnetic field), then  $\theta_N$  will align with  $\theta_L$  in times of the order of  $T_1$ . In GaAs  $T_1$  can vary from a few seconds to a day, depending on the type of doping, impurity concentration and lattice temperature.

Cooling of the NLS by the method of optical cooling in a longitudinal magnetic field  $B_z = 100$  G for five minutes, followed by adiabatic demagnetization in a local nuclear field for a bulk n-GaAs sample was done in [7]. The essence of the adiabatic demagnetization method is to smoothly turn off the longitudinal magnetic field after optical pumping. The field should turn off in time  $T_2 < t < T_1$ , so that during this process, thermodynamic equilibrium has time to be established in the NSS. Using this method, the authors managed to achieve a nuclear spin temperature  $\theta_N \sim 10^{-6}$  K.

It is also worth noting the possibility of obtaining both positive and negative spin temperatures. In an experiment on optical cooling, this is controlled by the mutual orientation of the longitudinal magnetic field  $B_z$  and the direction of the mean electron spin  $S$  according to the formula:

$$\beta = \frac{4I}{\mu_N} \frac{(B \cdot S)}{B_L^2 \xi + B^2}, \quad (1.29)$$

where  $\beta$  – inverse spin temperature,  $\vec{B} = (0, 0, B_z)$  – external magnetic field,  $2 < \xi < 3$  and it depends on the degree of electrons correlation [2,11].

In external magnetic fields  $B \gg B_L$  two energy reservoirs are distinguished in the NSS: Zeeman and spin-spin, each of which is characterized by its own spin temperature and interacts with the lattice at different time scales (Figure 9 (b)). Between themselves, these reservoirs exchange energy and come to thermodynamic equilibrium during a time called mixing time  $\tau_m$ . In weak magnetic fields (Figure 9 (a)), the NSS has one reservoir of energy, which comes into equilibrium with the lattice during the spin-lattice relaxation times  $T_1$ , mentioned above.

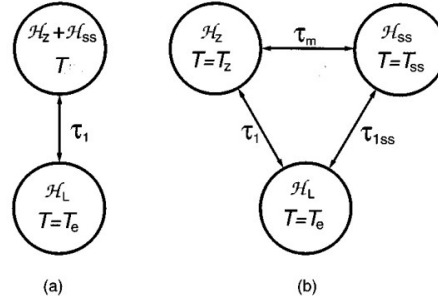


Figure 9 – Schematic illustrations of Zeeman  $H_Z$ , spin-spin  $H_{SS}$  and lattice  $H_L$  energy reservoirs for cases of weak (a) and strong (b) magnetic fields.

Figure 10 shows the equilibrium distribution of nuclear spins  $I = \frac{1}{2}$  over the Zeeman energy levels for three cases: (a)  $\theta_Z > 0$ ,  $\theta_{SS} > 0$ , (b)  $\theta_Z < 0$ ,  $\theta_{SS} > 0$ , (c)  $\theta_Z < 0$ ,  $\theta_{SS} < 0$ , where  $\theta_Z$  – Zeeman energy reservoir temperature,  $\theta_{SS}$  – spin-spin energy reservoir temperature [13].

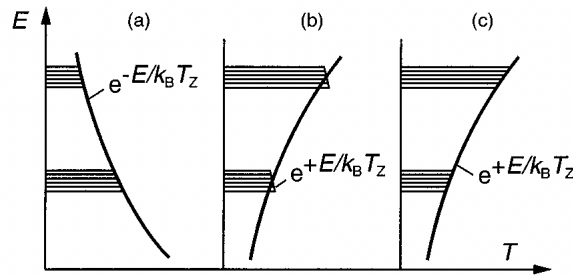


Figure 10 – Zeeman distribution of nuclear spins (the case for the nuclear spin  $I=1/2$ ) and spin-spin distribution by energy levels for three possible combinations of signs of spin temperatures: (a)  $\theta_Z > 0$ ,  $\theta_{SS} > 0$ , (b)  $\theta_Z < 0$ ,  $\theta_{SS} > 0$ , (c)  $\theta_Z < 0$ ,  $\theta_{SS} < 0$ . The splitting of the Zeeman levels is caused by spin-spin interactions.

In paper [26], the possibility of obtaining a nuclear spin temperature different from the lattice temperature in a bulk  $n$ -GaAs sample built into a microcavity (MC) was checked by studying the nuclear spin polarization during adiabatic demagnetization. According to the second law of thermodynamics, the behavior of nuclear polarization during adiabatic demagnetization (or magnetization reversal) is determined by the spin temperature. So, if the NSS is cooled in the field  $B_i$  to the temperature  $\theta_{Ni}$ , and then adiabatically slowly turn off the external field, then the spin temperature takes on the value:

$$\theta_N = \frac{\theta_{Ni} \sqrt{B_L^2 + B^2}}{B_i}. \quad (1.30)$$

Nuclear polarization:

$$P_N = \frac{B}{3K_b \theta_N} \hbar \langle \gamma_N (I + 1) \rangle. \quad (1.31)$$

Averaging occurs over isotopes.

From eq. (1.30) and eq. (1.31) it follows that in fields  $B \geq B_L$  with decreasing field  $B$ , the nuclear polarization remains constant, and the spin temperature decreases linearly. Upon reaching zero field in the process of adiabatic demagnetization ( $B = 0$ ),  $\theta_N$  will have a minimum value, which is limited by the local field, and the nuclear polarization will be equal to zero. This is the basic principle of cooling the NSS through adiabatic demagnetization.

In work [26], the state of the NSS in the process of adiabatic demagnetization was detected using the Faraday rotation method and by measuring the spin noise signal of localized electrons. Despite the presence of quadrupole interactions in a MC sample, the authors nevertheless managed to cool the NSS and show that even in the presence of a quadrupole interaction, thermodynamic equilibrium is established within the NSS in the process of adiabatic demagnetization. This is due to the exchange of energy between the Zeeman and quadrupole energy reservoirs through dipole-dipole flip-flop transitions. The minimum spin temperature for MC samples in this work was  $\theta_N = 6 \mu K$ .

It is worth saying a few words about obtaining record low nuclear spin temperatures in metals. As mentioned at the beginning of Section 1.5 on nuclear magnetic order, in the 1980s, groups of scientists from Denmark and Finland were engaged in experiments to obtain nuclear magnetic order in metals such as silver, copper and rhodium [13]. It was necessary to cool nuclear spins to ultra-low spin temperatures. To do this, they used a cascade adiabatic demagnetization protocol. Figure 11 from [33] shows the values of nuclear spin temperatures that were achieved in metals in the period from the 1970s to 2010.

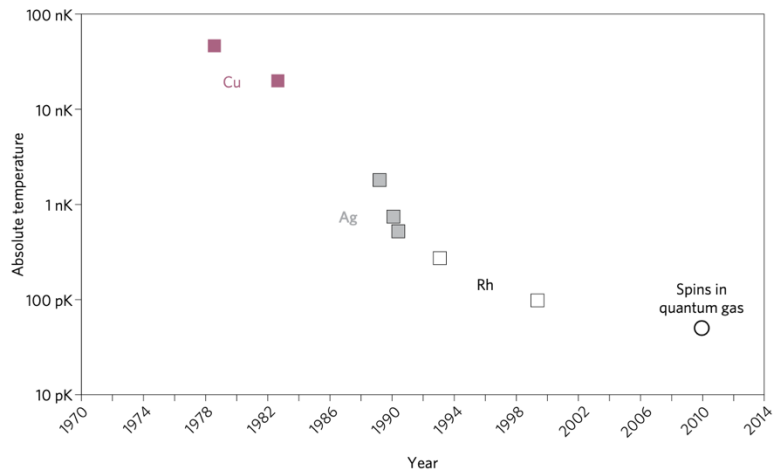


Figure 11 – Record low nuclear spin temperatures obtained in the metals Cu, Ag and Rh from the 1970s to 2010 [33].

## 1.7 Nuclear spin polaron concept

As mentioned above, the formation of nuclear spin order due to the dipole-dipole interaction is possible at very low nuclear spin temperatures of the order of nanokelvin. But in the concept of a nuclear spin polaron, the formation of a nuclear magnetic order is possible not due to the dipole-dipole interaction between nuclear spins, but due to a stronger hyperfine interaction between the electron spin localized on the donor impurity and nuclear spins located in the region of electron localization (for GaAs the number of nuclear spins in this region is equal to  $N \sim 10^5$ ). Such an ordered state of nuclear spins can be obtained at higher spin temperatures (of the order of  $10^{-7}$  K), which can be achieved in experiments on optical cooling with further adiabatic demagnetization.

The theory of the nuclear polaron formation during optical cooling was proposed by I.A. Merkulov in 1998 [4] in the approximation of the mean field theory. Using the method of optical cooling followed by adiabatic demagnetization, the nuclear spin temperature is lowered to values at which critical fluctuations grow, leading to the formation of a correlated state of a localized electron and the surrounding nuclear spins. According to I.A.Merkulov's estimates, such a transition is possible at a nuclear spin temperature of the order of  $10^{-7}$  K (in this case, the electrons have a lattice temperature 4 K). Also, an important criterion for the growth of critical fluctuations and the subsequent formation

of a polaron is that the product of the electron and nuclear spin temperatures must be greater than zero (i.e., the temperatures must have the same sign).

In work [5] in 2017, the polaron of I. A. Merkulov was considered for a finite number of nuclear spins (considered cases for  $N = 10^2, 10^4$  and  $10^6$ ). In the case of a finite number of nuclei included in a polaron, the critical effects that arise when approaching the temperature of polaron formation are smoothed out by nuclear spin fluctuations. Figure 12 shows calculations for the average spin of a nuclear polaron  $j_T$  depending on temperature  $t = \frac{\theta_N}{\theta_c}$ , where  $\theta_c$  – the temperature below which the polaron is formed. The black line in the figure shows the calculation within the framework of the mean field theory, and the colored lines - for the cases of a finite number of spins in the polaron. It is seen that when a finite number of spins is taken into account, the abrupt transition to the polaron state is smoothed out by fluctuations. This fact can be used for experimental detection of the pre-polaron state.

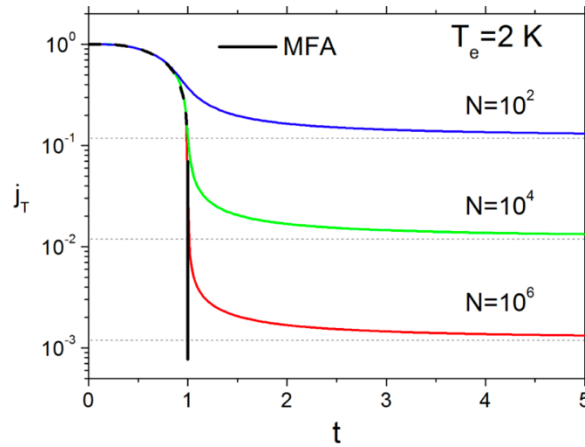


Figure 12 – Calculation of the average polaron spin  $j_T$  depending on the normalized nuclear spin temperature  $t = \frac{\theta_N}{\theta_c}$  within the framework of the mean field theory (black line) and taking into account the finite number of nuclear spins included in the polaron (colored lines) [5].

One way or another, for the formation of a nuclear spin polaron, it is necessary to lower the temperature of the NSS to values on the order of a fraction of a microkelvin. Achieving such a low spin temperature is limited by several factors. A dipole-dipole reservoir, into which nuclear spins give up their energy during the formation of a polaron state, is an imperfect thermostat (it has a finite heat capacity). The magnitude of the polarization of the electron spins also affects the spin temperature [4] (for the formation of a polaron at a lattice temperature of 4 K, it exceeds the average electronic polarization that electrons have in bulk samples. Also, an important factor limiting the obtaining of a low temperature of the NSS is the magnitude of the local nuclear field  $B_L$ . In experiments, the values of spin temperatures achieved as a result of optical cooling in an external field  $\theta_N$  and adiabatic

demagnetization into the local field  $\theta_{N,adiab}$  are related to each other by the condition of constancy of the entropy of the NSS in the process of adiabatic demagnetization:

$$\theta_{N,adiab} = \theta_N \sqrt{\frac{B_L^2}{B_z^2 + B_L^2}}, \quad (1.32)$$

where  $\theta_N$  – nuclear spin temperature after optical cooling,  $B_z$  – longitudinal magnetic field in which optical cooling took place.

It can be seen from the formula that the smaller the local field, the lower temperature  $\theta_{N,adiab}$  can be reached. In bulk GaAs  $B_L = 1.4$  G [12], that when optically cooled to a temperature  $\theta_N \sim 10^{-4}$  K in  $B_z = 100$  G makes it possible to get  $\theta_{N,adiab} \sim 10^{-7}$  K. However, the presence of quadrupole interactions can increase the local field by an order of magnitude, which will lead to an increase in the minimum possible nuclear spin temperature [26].

Revealing the presence of quadrupole interactions, as well as elucidating their sources in bulk *n*-GaAs samples, for which the formation of polaron states is predicted, is an important step towards the experimental detection of a nuclear spin polaron. The main original part of this thesis will be devoted to the technique of revealing quadrupole interactions in bulk *n*-GaAs crystals.

## 1.8 Role of quadrupole interactions of nuclear spins in quantum dots, quantum wells and bulk samples

Depending on the magnitude of the deformation applied to the structure, different methods are used to study the reaction of the structure to it. In the case of applying a strong stress or deformation to study the distortion of the materials, methods of diffraction of electrons, photons or neutrons are used. However, in the case of weak deformations (both externally created and caused by the crystal structure), materials can give interesting optical responses, which require other methods to study [34]. In the case of studying deformations and the effects associated with them, the method of classical NMR is actively

used in semiconductor nanostructures, as well as the method of optically detectable NMR (ODNMR), which was mentioned at the beginning of this chapter.

A few introductory words about the quadrupole interaction in the nuclear spin system were said in Section 1. 1. 6. In the general case, the source of quadrupole effects in semiconductors and semiconductor nanostructures is the non-spherical distribution of the nuclear charge of atoms with spin  $I \geq \frac{1}{2}$  (Figure 13). This charge distribution creates an electric quadrupole moment that interacts with the electric field gradient in the sample. The sources of such gradients can differ for bulk semiconductors and for nanostructures based on them. It should be noted that nuclei do not have an electric dipole moment, and therefore they do not interact with uniform electric fields. In the next sections, the sources of quadrupole interactions in quantum dots, quantum wells, microcavities, and bulk semiconductors will be considered.

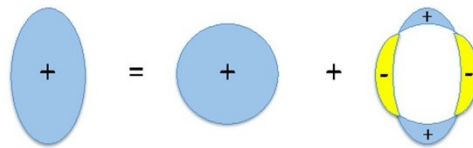


Figure13 – Schematic representation of a nucleus with a non-spherical charge distribution. It can be thought of as a spherically symmetric charge distribution plus a positive charge and a negative charge band around the equator.

### 1.8.1 Role of quadrupole effects in quantum dots

Due to lattice deformation, the quadrupole effects in quantum dots (QDs) play an important role in nuclear spin dynamics in comparison with undeformed bulk samples. It is known that if a crystal has cubic symmetry (as, for example, bulk GaAs), then there are no electric field gradients and no quadrupole interactions. However, in the case of self-organized QDs (for example, such as InAs/GaAs), cubic symmetry is suppressed due to biaxial deformation caused by the lattice mismatch in InAs and GaAs of the order of 7% [35]. Also, during the growth process, mutual diffusion of In and Ga atoms occurs. This leads to the fact that a significant part of As atoms have non-identical nearest neighbors. Thus, the resulting deformation in the QD leads to an electric field gradient (EFG) directed either along



the axis  $\langle 111 \rangle$ , or along the  $\langle 100 \rangle$ . The direction of the axis of the EFG tensor  $z'$  relative to the growth axis of the QD  $z$  is given by the angle  $\theta$  for each nucleus in QD (figure 14 (a)). Then the Hamiltonian describing the quadrupole interactions in the QD has the following form:

$$\hat{H}_Q = \frac{\hbar\omega_Q}{2} \left( \hat{I}_{z'}^2 - I(I+1) \right), \quad (1.33)$$

where  $\hbar\omega_Q$  – quadrupole splitting,  $\hat{I}_{z'}$  - nuclear spin projection on the axis of EFG tensor. It is possible to write down the projection of the nuclear spin in the QD axes:  $\hat{I}_{z'} = \hat{I}_z \cos(\theta) + \hat{I}_x \sin(\theta)$ . Then the Hamiltonian will be written as follows:

$$\hat{H}_Q = \frac{\hbar\omega_Q}{2} \left( \hat{I}_z^2 \cos^2(\theta) - \frac{I(I+1)}{3} + (\hat{I}_z \hat{I}_x + \hat{I}_x \hat{I}_z) \sin(\theta) \cos(\theta) + \hat{I}_x^2 \sin^2(\theta) \right). \quad (1.34)$$

For simplicity, it is often assumed that the EFG has axial symmetry along the QD growth axis. This means that the magnitude of the quadrupole interaction does not depend on the direction of the EFG axis  $z'$  in the plane  $(x, y)$  and is determined by the angle  $\theta$  between growth axis  $z$  and EFG axis  $z'$ .

In zero magnetic field in the presence of quadrupole interactions, nuclear spin energy levels split into a system of non-equidistant doublets (Figure 14 (b)). The distances between neighboring doublets are determined by the value of the quadrupole splitting  $\hbar\omega_Q$ .

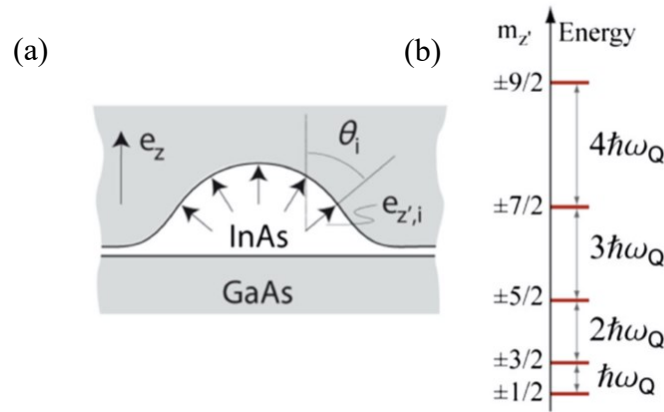


Figure 14 – (a) Schematic illustration of the direction of splitting in InAs/GaAs QD; (b) Splitting of nuclear spin energy levels into a system of doublets for spin  $I = 9/2$ .

In what follows, we will present the results of some works in which the phenomena in the NSS caused by quadrupole effects were studied.

The dynamics of quadrupole nuclear spins in InAs/GaAs quantum dots was studied in [36] for two samples, which differed in annealing temperatures and, as a consequence, in the magnitude of deformation. To study the dynamics of the NSS, we measured the PL depolarization curves in transverse magnetic fields (Hanle curves) at various pump polarization modulation frequencies. The main experimental effect was the modification of the Hanle curve with an increase in the modulation period: the W-singularity disappeared in weak transverse magnetic fields and the Hanle curve narrowed. To explain this effect, the authors proposed a model that separately took into account the dynamics of the nuclear dipole field, which is set by the polarization of the doublet  $\pm 1/2$ , and separately the dynamics of the quadrupole nuclear field, which is given by the doublets  $\pm \frac{3}{2}, \dots, \pm \frac{9}{2}$ . The dynamics of these two components of the nuclear field are characterized by relaxation times; therefore, the difference in the relaxation times of these components determines the dynamics of the Hanle curve. For a sample with a lower strain, weak pump modulation suppresses the dipole component of the nuclear field, which leads to the disappearance of the W- singularity, but the quadrupole component is partially retained and stabilizes the electron spin polarization in high magnetic fields. With fast modulation, both components are suppressed, so the electron spin is depolarized faster in the transverse field and the Hanle curve narrows. For a sample with a larger deformation, these two components are suppressed synchronously; therefore, the disappearance of the W-singularity and the narrowing of the Hanle curve with an increase in the modulation period occur in parallel.

In paper [37], for the same samples with quantum dots as in [36], transitions between nuclear quadrupole energy levels were studied using the method of resonant optical pumping of an electron – nuclear spin system in an external transverse magnetic field. The essence of the method consisted in measuring the Hanle curves at different frequencies of modulation of the pump polarization, as well as when an oscillating magnetic field is applied at a frequency equal to the modulation frequency. At the same time, during the recording of the Hanle curve, the frequency was fixed. So, by choosing a certain frequency and scanning the transverse magnetic field, you can go through the resonances of various quadrupole isotopes (In, Ga and As). When approaching resonance, nuclear magnetization perpendicular to the external transverse magnetic field appears. It is created by the nuclear spins of a particular isotope, which precess in a given transverse field. This precession, along with modulation of the Knight field, maintains electron spin polarization, which leads to a peak in the Hanle curve. This method was used to detect resonances of In, Ga, and As nuclei, which correspond to both intra-doublet transitions, split by an external magnetic field, and to inter-doublet transitions. The positions of these resonances for the two samples were different, which is explained by the different magnitude of the quadrupole interaction in the samples. The theoretical model proposed by the authors, which took into account the Zeeman splitting of nuclear spin states in the presence of quadrupole splitting, made it possible to identify each experimentally observed resonance. The model had only one fitting parameter - the biaxial deformation

component  $\varepsilon_b = 2\varepsilon_{zz} - \varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}$ , which coincided with the value previously obtained from structural modeling of quantum dots.

Thus, the method of measuring Hanle curves makes it possible to study the electron-nuclear spin dynamics in the case of strong quadrupole interactions, which are characteristic of quantum dots. This method was also successfully used in [34], where nuclear spin dynamics was studied by fast scanning of an oscillating magnetic field while recording the Hanle curve. The papers [39, 40] show the efficiency of using ODNMR for structural analysis of QDs, as well as the use of an oscillating magnetic field to control nuclear spin states in QDs. The above methods can be effectively used to study the phenomena associated with quadrupole interactions in semiconductor nanostructures (for example, in QDs). In the original part of this thesis, bulk GaAs crystals, in which the quadrupole effects are much weaker, were studied. The proposed technique of nuclear spin warm-up spectroscopy in the thesis makes it possible to study weak quadrupole effects. As noted in Section 1. 1. 6., the presence of nuclear quadrupole interactions in the sample is characterized by nonzero components of the EFG tensor. The shapes of the tensors that form the EFG tensor depend on the symmetry of the crystal lattice. For crystals with a zinc blende crystal lattice, the 4-rank gradient-elastic tensor  $S_{ijkl}$  has only three non-zero components:  $S_{11}$ ,  $S_{12}$  and  $S_{44}$ , 4-rank stiffness tensor  $C_{ijkl}$  also has three non-zero components:  $C_{11}$ ,  $C_{12}$  and  $C_{44}$  [41]. Piezoelectric materials, which include semiconductors of the A3B5 group, are characterized by piezoelectric properties, which are expressed in the occurrence of an internal electric field and dielectric polarization of the crystal, which can also lead to quadrupole interactions. Thus, for crystals with the zinc blende structure, the 3-rank piezoelectric tensor has three equal non-zero components:  $R_{14} = R_{25} = R_{36}$ . The values of the components of these tensors required for the original part of the thesis are given in Table 2.

Knowing the values of the nonzero tensor components that are responsible for one or another type of deformation in the crystal under study is necessary to determine how much and in what directions the crystal is deformed, or what value the built-in electric field has (in the case of dielectric materials). Experimental work was carried out for the GaAs material to determine the values of the components of these tensors. For example, in papers [42, 43], authors determined the components of the tensor  $S_{ijkl}$  for isotopes In, Sb, Ga and As in bulk InAs, InSb, GaAs GaSb and AlSb by nuclear acoustic resonance. Later, the authors of papers [23, 44] with the help of NMR for QDs, refined the values of the component of this tensor for isotopes  $^{69,71}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  (the values of these components are given in Table 2 and are used to analyze the experimental results in this thesis). In [24], using the pulsed NMR method in the presence of an external uniform electric field, the authors obtained the values of the non-zero components of the piezoelectric tensor for isotopes  $^{69,71}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$ . These components are also required for the analysis of experimental data in this thesis. They are shown in Table 2 in terms of the more accurate values of the quadrupole interaction constants obtained in work [22].

### 1.8.2 Role of quadrupole effects in quantum wells

One of the widespread methods for measuring the quadrupole split energy levels of nuclear spins in quantum wells (QW) is the method of optically detectable nuclear magnetic resonance (ODNMR). For example, in paper [45], the ODNMR method is used to directly measure the magnitude of the quadrupole splitting of absorption peaks for A3B5 semiconductors using GaAs/AlGaAs quantum wells as an example. For this, authors of the work applied an external stress of a predetermined value to the sample under study in the form of a bend in the sample and measured the splitting of the absorption peaks of  $^{75}\text{As}$  and  $^{69}\text{Ga}$  isotopes: the central line in the absorption spectrum corresponding to the  $-\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$ , transition is accompanied by low-frequency and high-frequency satellites corresponding to the transitions  $\pm\frac{1}{2} \rightarrow \pm\frac{3}{2}$ . The frequency difference between the center line and the satellite is related to the magnitude of the previously known applied bend and to the corresponding component of the EFG tensor. Thus, the authors independently obtained the value of this component, which coincided with the value obtained from experiments on nuclear acoustic resonance. This, in particular, confirms the efficiency of the ODNMR method for determining the values of internal deformations in samples, caused, for example, by the mismatch of the lattice constants of the well and barriers, as in the case of QWs.

In paper [46], for the example of two samples with five GaAs/AlGaAs QWs with different widths, using the ODNMR method, the splitting of the absorption peak of the  $^{75}\text{As}$  isotope was measured at different points in the plane and in the depth of the sample. For one of the samples, ODNMR spectra were obtained from one QW closest to the sample surface. The spectra were measured at different points on the sample surface with a spatial resolution of  $50 \mu\text{m}$ . In this case, the quadrupole splitting varied from 1 kHz to 12 kHz, which corresponds to a change in strains from  $\epsilon < 4.7 * 10^{-6}$  to  $\epsilon = 5.7 * 10^{-5}$ . In this case, the quadrupole splitting did not change deep into the sample. This stress is caused by uniaxial deformation due to the mismatch of the lattice constants of the well and barriers and is directed along the growth axis of the sample. A metal contact was applied to the surface of the second sample, which formed a Schottky barrier and was the source of the electric field. Since the arrangement of the nuclei in the lattice in GaAs does not have inversion symmetry, the electric field distorts the distribution of charges around the nuclei, that leads to quadrupole splitting, which change deeper into the sample. Thus, the quadrupole splitting from the narrowest QW to the widest, located at a distance of 210 nm,

differed by 3.2 kHz, which corresponded to a change in the electric field by 390 kV/m. Thus, in this work, authors showed that the sources of quadrupole splitting in samples with QWs are uniaxial deformation and an internal electric field, which have a spatial spread. However, the authors note that it is difficult to separate these two contributions to quadrupole splitting from these experiments. It would also be desirable to measure the total strain tensor. For this it is necessary to change the direction of the external magnetic field. In particular, it is necessary to carry out measurements when the direction of the field coincides with the direction of the principal axis of the EFG tensor and the quadrupole interactions are suppressed. In the original part of this thesis, this task was partially accomplished: absorption spectra were measured in four mutual orientations of static and oscillating magnetic fields, thereby independently determining the values of various contributions to the quadrupole splitting of the sample under study. Possible stress sources (conditions of structure growth, type of substrate, different coefficients of thermal expansion of the sample, holder, and glue), which cause quadrupole interactions, indicated in paper [46], are important for explaining the nature of quadrupole splitting observed in the absorption spectra of bulk *n*-GaAs samples.

### 1.8.3 Role of quadrupole effects in bulk A3B5 materials

The NMR method (stationary and pulsed) is successfully used to study the quadrupole effects in bulk semiconductors, in which the quadrupole interaction can appear, for example, due to various external influences on the crystal or due to doping.

As mentioned above, in bulk semiconductors that have a cubic symmetry group (these include semiconductors of the A3B5 group and, in particular, GaAs), in the absence of external influences on the crystal, all components of the EFG tensor are equal to zero and there is no quadrupole interaction. In work [47], an external stress was applied to bulk InSb and GaSb crystals, which have cubic symmetry, which changed the crystal symmetry and caused quadrupole effects. The stress was applied at different magnitudes and in different crystallographic directions, which made it possible to obtain a crystal of a different symmetry from a cubic symmetry crystal. To detect the presence of quadrupole interactions in deformed crystals, the NMR spectra were measured, in which the quadrupole splitting of the resonance absorption lines was observed. The resulting splitting was related to the applied strain. The authors note

that from experiments it is possible to detect the amount of deformation less than  $10^{-4}$ , as well as apply the NMR method in the opposite direction: to check the degree of perfection of the crystal lattice.

In paper [48], using the pulsed NMR method, the effect of isovalent impurities on the appearance of EFG in bulk GaAs crystals doped with In atoms of various concentrations was investigated by the example of measuring the NMR spectrum of isotopes  $^{75}\text{As}$ .

## 1.9 Influence of quadrupole effects on the local field

The presence of quadrupole interactions in a semiconductor can increase the value of the local field caused by dipole-dipole interactions between nuclear spins by several times. In the absence of quadrupole effects, in bulk GaAs, the value of the local field is determined by purely dipole-dipole interactions and is equal to  $B_L = B_{dd} = 1.4 \text{ G}$  [12]. About the local field was discussed in Section 1. 1. 2. It was also noted above that the magnitude of the local field determines the minimum possible spin temperature that can be achieved by the method of optical cooling followed by adiabatic demagnetization. Now we would like to note the influence of quadrupole effects on the magnitude of the local field and, accordingly, on the magnitude of the nuclear spin temperature using the example of paper [26], in which  $n$ -GaAs sample embedded in a microcavity (MC) and bulk sample of  $n$ -GaAs. The main idea of this work was to show the possibility of establishing the nuclear spin temperature in a MC sample, in which there is a quadrupole interaction due to stresses between the cavity mirrors and GaAs. However, we would like to highlight this work from the point of view of the effect of quadrupole interactions on the magnitude of the local field and on the spin temperature.

In order to cool the nuclear spins, authors used the method of optical pumping in a longitudinal magnetic field  $B_z$ , then the field  $B_z$  was turned off and the stage of adiabatic demagnetization went on, during which the transverse component of the field  $B_{\perp}$  was scanned from -50 G to 0 G, then from 0 to 50 G, and the spin noise signal was measured. The results of these experiments at two signs of the spin temperature are shown in Figure 15 for a MC sample (Figure 15 (a), (b)) and for a bulk sample (Figure 15 (c), (d)).

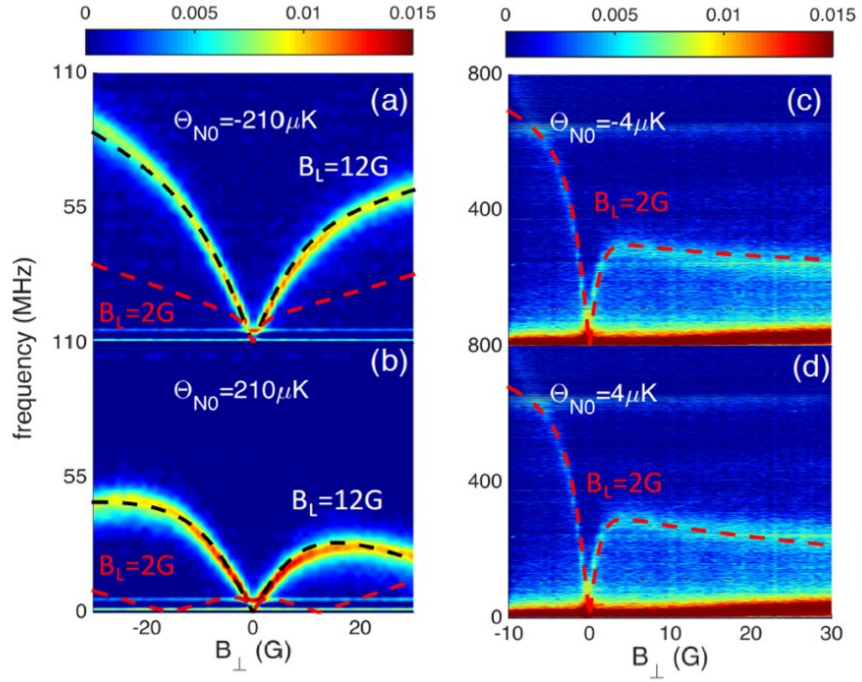


Figure 15 – Evolution of the spin noise signal during adiabatic demagnetization (field range from -50 G to 0 G) and magnetization (field range from 0 to 50 G) for a MC sample (a), (d) and for a bulk sample (c), (d). Black dashed lines indicate fitting functions for experimental data on a MC sample, red dotted lines indicate fitting functions with a fixed value of the local field  $B_L = 2$  G, which is expected for a bulk sample.

The evolution of the SN signal with the field  $B_{\perp}$  is characterized by a change in the precession frequency of the electron spin in the total field  $B_{\perp} + B_N$ , where  $B_N$  – the Overhauser field obtained as a result of optical cooling, which relax during the field scan  $B_{\perp}$  (this explains the asymmetry of the experimental curves obtained with respect to  $B_{\perp} = 0$ ). The experimental data are fitted by the formula:

$$\theta_N = \frac{\theta_{Ni} \sqrt{B_L^2 + B_{\perp}^2}}{B_z}, \quad (1.35)$$

where  $\theta_{Ni}$  – nuclear spin temperature obtained after optical cooling in a field  $B_z$ . The adjustable parameters were the local field strength  $B_L$  and spin temperature after adiabatic demagnetization  $\theta_{N0} = \frac{\theta_{Ni} B_L}{B_z}$ . For MC sample, the local field value is  $B_L = 12$  G (Figure 15 (a), (b)), while for a bulk sample, the local field turned out to be close to the expected one:  $B_L = 2$  G. The sixfold difference in the local fields is explained by the presence of quadrupole interactions in the MC sample due to the stresses

between the mirror and GaAs. In this case, the value of the spin temperature  $\theta_{N0}$  for the MC sample also turned out to be higher than for the bulk sample:  $6 \mu K$  compared to  $\pm 4 \mu K$ .

Thus, work [26] is a striking example of how the presence of quadrupole interactions leads to an increase in the spin temperature, thereby complicating the attainment of the temperatures necessary for the transition of the NSS to the polaron state (see Section 2. 2).

One of the problems solved in this thesis is the study of weak quadrupole interactions arising in bulk  $n$ -GaAs samples, which increase the local field and the minimum possible spin temperature.

### 1.10 Nuclear spin warming up by oscillating magnetic field

This section will present the theory of nuclear spins warming up with oscillating magnetic field, which is necessary for understanding the physical essence of experiments on measuring absorption spectra.

In a zero magnetic field, the heat capacity of the NSS is determined by the dipole-dipole interactions between neighboring nuclear spins. Heat capacity is characterized by how much energy the system can receive or give when its temperature changes. The presence of a non-zero heat capacity of the dipole-dipole energy reservoir of the NSS in the absence of an external magnetic field allows nuclear spins to absorb the energy of an oscillating magnetic field.

Under the influence of an oscillating magnetic field at a frequency  $\omega$ , the NSS energy  $E_{NSS}$  per spin changes at a rate  $q_\omega$ :

$$q_\omega = \frac{\partial E_{NSS}}{\partial t} = -\left\langle \frac{\partial B(t)}{\partial t} M(t) \right\rangle = \frac{\partial B(t)}{\partial t} \sum_i x_i \hbar \gamma_{Ni} I_i(t), \quad (1.36)$$

where  $M(t)$  – nuclear magnetic moment, induced by oscillating magnetic field  $B(t)$ ,  $x_i$  – isotopic fraction of the  $i$ -th isotope,  $I_i$  – average nuclear spin of the  $i$ -th isotope.

Oscillating magnetic field directed along the x axis has the form:

$$B_x(t) = B_1 \cos(\omega t) = B_1 \left( \frac{e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}}{2} \right). \quad (1.37)$$



Average nuclear spin directed along the oscillating magnetic field:

$$I_{ix}(t) = \frac{M_i(t)}{\hbar\gamma_{Ni}} = \frac{\chi_\omega B_x(t)}{\hbar\gamma_{Ni}} = \frac{\chi_\omega B_1 \left( \frac{e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}}{2} \right)}{\hbar\gamma_{Ni}}, \quad (1.38)$$

where  $\chi_\omega$  – susceptibility of the NSS at frequency  $\omega$ .

Susceptibility can be represented through its real and imaginary parts:  $\chi_\omega = \chi'_\omega - i\chi''_\omega$ . Then the average nuclear spin:

$$I_{ix}(t) = \frac{B_1}{\hbar\gamma_{Ni}} (\chi'_\omega \cos(\omega t) - \chi''_\omega \sin(\omega t)). \quad (1.39)$$

Period-average change in the energy of the NSS under the action of an oscillating magnetic field, taking into account that  $\frac{\partial B(t)}{\partial t} = B_1 \omega \sin(\omega t)$ :

$$q_\omega = \frac{1}{2} B_1^2 \omega \sum_i x_i \chi''_{i\omega}. \quad (1.40)$$

The fluctuation-dissipation theorem connects the imaginary part of the susceptibility  $\chi''_\omega$  and the spectral density of fluctuations  $I_{x,\omega}^2$ :

$$\chi''_{i\omega} = \frac{1}{2} \beta \omega (\hbar\gamma_{Ni})^2 I_{ix,\omega}^2, \quad (1.41)$$

where  $\beta$  – inverse spin temperature.

And the spectral density of fluctuations is the Fourier transform of the correlator of the total nuclear spin  $G_{i\omega}$ :

$$\langle I_{x,\omega}^2 \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} \langle I_i(0)I_i(t) \rangle \frac{dt}{spI_x^2} = \frac{1}{3} I(I+1)G_{i\omega}. \quad (1.42)$$

Taking into account the last two equations, as well as using the formula for the heat capacity of the NSS in an external field  $B$ :  $C_N = \frac{1}{3} I(I+1)(B^2 + B_L^2) \hbar^2 \sum_i x_i \gamma_{Ni}^2$ , it is possible to write down the equation for the heating rate of the NSS  $\frac{1}{T_{RF}}$  by oscillating magnetic field on frequency  $\omega$ :

$$\left( \frac{1}{T_{RF}} \right) \omega = \frac{q_\omega}{C_N \beta} = \frac{\omega^2}{4} \frac{B_1^2}{B^2 + B_L^2} G_\omega. \quad (1.43)$$

From the formula for warming up (1.43) it can be seen that even at  $B = 0$  the NSS is capable of absorbing the energy of oscillating magnetic field. Also, this formula sets the relationship between the warming up rate at the frequency  $\omega$ , which can be measured experimentally (see Section 2.1.4), and the Fourier transform of the correlator  $G_\omega$  of total nuclear spin magnetization.

By definition, the correlator connects the direction of the total nuclear spin at time  $t$  with the direction of the total nuclear spin at time  $t_1$ :  $G(t_1 - t) = \langle I(t)I(t_1) \rangle$ , where averaging occurs over all possible realizations of the total nuclear spin direction. However, averaging over directions can be replaced by averaging over time, then the magnetization correlations can be considered as a relationship between the direction of the total nuclear spin at the time  $t = 0$  with any other moment in time  $t$ :  $G(t) = \langle I(0)I(t) \rangle$ . As time tends to infinity, the correlations between the initial and final directions of the total nuclear spin disappear and  $G = 0$ . Conversely, at the zero moment of time, the state can be considered completely correlated and  $G = 1$ . The correlator characterizes the fluctuations of the magnetization of the NSS. In particular, the presence of fluctuations is a necessary condition for the absorption of an oscillating magnetic field by nuclear spins: if there were no fluctuations, then at any moment of time the state of the NSS would be correlated, the frequency dependence of the Fourier transform of the correlator  $G_\omega$  would have a narrow peak at zero frequency, while  $\frac{1}{T_{RF}} = 0$  (the NSS does not absorb oscillating magnetic field).

Therefore, the presence of dipole-dipole interactions makes it possible to measure the absorption spectra and the NSS correlator even in zero magnetic field.

### 1.11 Nuclear spin cooling in a rotating frame

The main method of cooling the NSS is the optical polarization of nuclear spins, followed by adiabatic demagnetization in a local field. At a lattice temperature of 4 K, using this method, a nuclear spin temperature of the order of  $10^{-6}$  K for a bulk sample [7] and  $\pm 4 \mu\text{K}$  for a sample in a microcavity [26] was achieved. This method of obtaining low spin temperatures is quite simple and does not require high magnetic fields and a dissolution cryostat. Along with the traditional adiabatic demagnetization in the coordinate system associated with the direction of the static magnetic field from which the demagnetization occurs, there is also a method of adiabatic demagnetization in a rotating coordinate

system. This method is described in [49, 50] and makes it possible to increase the relaxation time of the rotated nuclear magnetization from  $T_2 \sim 100 \mu\text{s}$  to several seconds by applying a supporting pulse (this method is called spin locking). Such a long-lived nuclear spin polarization rotated with respect to the direction of the static field can be characterized by the nuclear spin temperature, which can be lowered by adiabatically slowly decreasing the amplitude of the supporting field. Let us describe in more detail the process of adiabatic demagnetization in the rotating frame.

The initial polarization of nuclear spins occurs due to their hyperfine interaction with spin-polarized electrons in some external static magnetic field  $B_0$ . The initial nuclear magnetization obtained in this way can be rotated by  $90^\circ$  relative to the direction of the field  $B_0$  by radiofrequency (RF) field application  $B_1 \perp B_0$ . Let us consider the behavior of the rotated magnetization in a coordinate system rotating at the frequency of the applied RF field  $\omega$ . At rotating frame magnetization vector will precess around the effective field  $B_{eff}$  [51]:

$$B_{eff} = \sqrt{\left(B_0 - \frac{\omega}{\gamma_N}\right)^2 + B_1^2}. \quad (1.44)$$

Far from resonance, the magnetization vector precesses in  $B_{eff}$ . During adiabatic demagnetization, the magnetization will follow the direction of the effective field  $B_{eff}$ , and with an accurate hit in resonance, when  $B_{eff} = B_1$ , magnetization will be directed along  $B_1$ .

In this case, from the condition of entropy conservation of the NSS in the process of adiabatic demagnetization, the nuclear spin temperature will decrease to the value  $\theta_{N0}$ :

$$\theta_{N0} = \theta_N \frac{\sqrt{B_1^2 + B_L^2}}{\sqrt{B_{eff}^2 + B_L^2}}, \quad (1.45)$$

where  $\theta_N$  – nuclear spin temperature achieved by optical cooling,  $B_L$  – local field.

It should be noted that the relaxation of the NSS in the rotating frame is similar to the spin-lattice relaxation of nuclear spins in weak magnetic fields. The behavior of the spin temperature and magnetization during traditional adiabatic demagnetization and during demagnetization in the rotating frame has the same dependence from applied magnetic field (Figure 16). When the external field becomes of the order of the local field, the spin temperature stops changing, since from the condition of the constant Boltzmann factor  $\frac{\mu_b B_{eff}}{k_b \theta_N} = const$ , which is required for adiabatic demagnetization, at  $B_{eff} \sim B_L$  the NSS energy:  $\mu_b B_L = const$ , and hence the temperature  $\theta_N$  shouldn't change. At the same time, according to Curie's law, the temperature remains practically constant in fields, large local fields.

With a further decrease in the field, in the case of demagnetization in the rotating frame, the magnetization will decay with the rate of spin-lattice relaxation, and in the case of traditional demagnetization will decay with the rate of spin-spin relaxation  $\sim T_2$ .

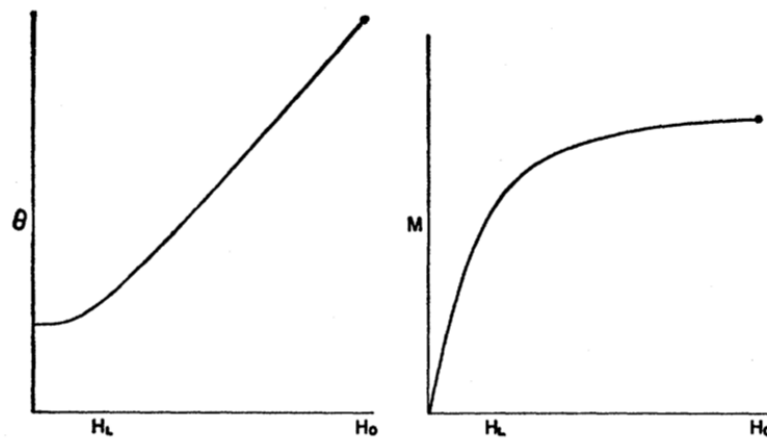


Figure 16 – Nuclear spin temperature behavior  $\theta$  and nuclear magnetization behavior  $M$  during the adiabatic demagnetization process.

One of the main features of the method of adiabatic demagnetization of nuclear spins in rotating frame is the possibility of selective cooling of a selected isotope in the material under study. Thus, the Overhauser field achieved upon preliminary optical cooling is created not by three (in the case of GaAs) nuclear isotopes, but only by one of them, which corresponds to a lower temperature of the nuclear spins of the selected isotope.

The original part of the thesis presents the results of experiments on adiabatic demagnetization in the rotating frame of the dipole-dipole + quadrupole reservoirs of nuclear spins of the  $^{75}\text{As}$  isotope in a lightly doped GaAs /AlGaAs QW, as well as the calculation of the dipole-dipole and quadrupole contributions to the local field. The resulting nuclear spin temperature has a record low value:  $\Theta_N = 0.54 \mu\text{K}$ .

## Chapter 2. Samples and experimental techniques

This chapter of the thesis will present two experimental parts. The first part will be devoted to the technique of nuclear spin warm up spectroscopy. Within the framework of this technique, the local field of nuclear spins in a bulk *n*-GaAs sample was measured. The absorption spectra of nuclear spins in bulk *n*-GaAs samples with various donor impurity concentrations were also obtained. A theoretical description of the frequency positions of the absorption peaks in external magnetic fields made it possible to determine the type and magnitude of quadrupole interactions in the samples under study. In the second part, experiments on selective cooling of nuclear spins of the  $^{75}\text{As}$  isotope in a rotating coordinate system of an undoped GaAs/AlGaAs quantum well will be presented. This cooling made it possible to lower the nuclear spin temperature of the  $^{75}\text{As}$  isotope to a record low value.

### 2.1 Nuclear spin warm up spectroscopy

#### 2.1.1 Samples

Using nuclear spin warm up spectroscopy, three samples of bulk *n*-GaAs with a donor impurity concentration in the range from the insulating to the metallic phase were studied (Table 4).

Table 4 – Characteristics of *n*-GaAs samples, which were investigated using the method of nuclear spin warm up spectroscopy.

Sample	Growth method	Donor concentration, $\text{cm}^{-3}$	T, K	d, $\mu\text{m}$
S1	Liquid phase epitaxy (LPE)	$\sim 10^{15}$	20	40
S2	Liquid phase epitaxy (LPE)	$2 \cdot 10^{15}$	16	20
S3	Molecular beam epitaxy (MBE)	$9 \cdot 10^{16}$	10	2

### 2.1.2 Measurement of photoluminescence polarization degree

The creation and measurement of nuclear polarization went through the detection of the photoluminescence (PL) polarization degree. To detect the PL signal, an experimental setup was created, shown in Figure 17. The samples under study were placed in a closed-cycle cryostat at a temperature of  $T = 10 - 20 \text{ K}$ . The source of continuous pumping was a laser diode with a radiation wavelength  $\lambda_{pump} = 780 \text{ nm}$ . A laser beam with a power of  $P = 15 \text{ mW}$  passed through a quarter-wave plate  $\frac{\lambda}{4}$  and focused on the sample. The polarized PL was collected by a lens into a parallel beam in reflection geometry, passed through a photoelastic modulator (PEM) operating at a frequency of 50 kHz, a Glan-Taylor (GT) prism, and focused on the entrance slit of the iHR 550 spectrometer, one exit slit of which was equipped with a Symphony II CCD-camera, cooled with liquid nitrogen, and the other with a photodiode. The photodiode was connected to a two-channel photon counter synchronized with a photoelastic modulator. The CCD camera was mainly used to obtain the PL spectra, which are shown in Figure 18 by solid lines for the three samples (the shown spectra are normalized). The PL polarization spectra were measured with a photodiode. They are shown in Figure 18 by open circles. To apply external magnetic fields along and across the pump beam, two pairs of coils were used, which created magnetic fields up to 400 G. Also, in experiments on nuclear spin warm up spectroscopy, it was necessary to compensate of earth's magnetic fields around the sample, since the measurements took place

in fields weaker than earth's magnetic fields. For this, three pairs of Helmholtz coils were designed, which made it possible to compensate the earth's magnetic fields in three directions with an accuracy of  $5 * 10^{-3}$  G. Also, inside the cryostat, near to the sample, two coils were built in, which created oscillating magnetic fields along and across the pump beam in the frequency range from a few Hz to hundreds of kHz. The working range was frequencies from 100 Hz to 120 kHz.

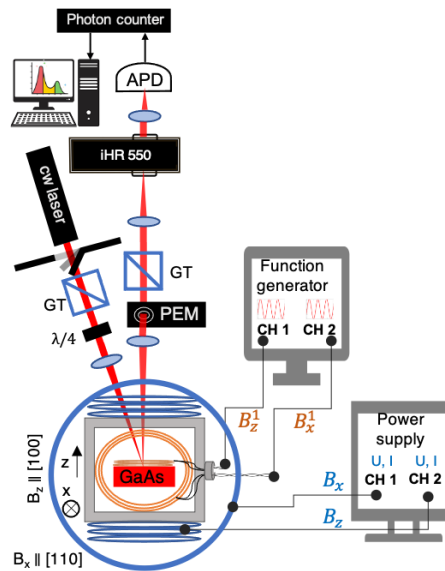


Figure 17 – Experimental setup for nuclear spin warm up spectroscopy of bulk *n*-GaAs samples. The red lines show the path of the pump beam and the PL signal. Coils are marked in blue, which create constant magnetic fields along the ( $B_z$ ) and across ( $B_x$ ) the pump beam. The currents through these coils are controlled by a two-channel power supply. Oscillating field coils are marked in orange, which also create fields in two directions: along ( $B_z^1$ ) and across ( $B_x^1$ ) the pump beam. The frequency and amplitude of the oscillating current passing through coils is regulated by a two-channel function generator.

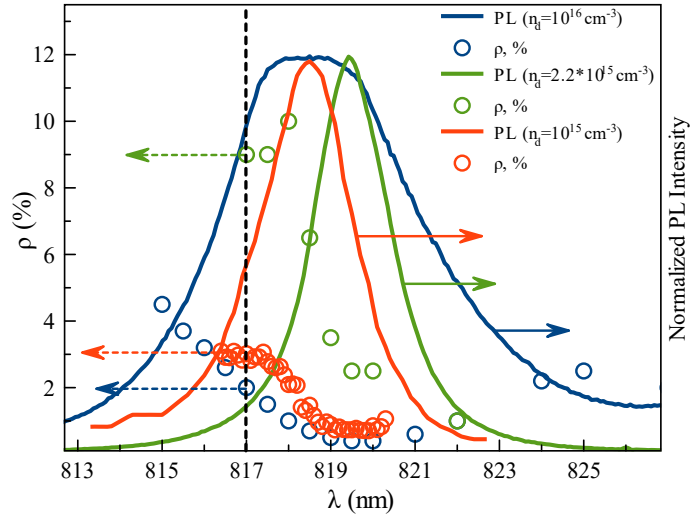


Figure 18 – PL spectra (solid lines) and PL polarizations (open circles) measured with a CCD camera at temperatures  $T = 10 - 20 K$  for three samples. The black vertical line shows the detection wavelength  $\lambda_{det} = 817 nm$  and the corresponding degrees of PL polarization for three samples.

There are various techniques for measuring the degree of polarization of radiation. The simplest of these is the alternate detection of radiation intensities in two polarizations. For this, light is passed through a quarter-wave plate  $\frac{\lambda}{4}$  and polarizer, after which the signal is recorded by a detector. By turning the plate, the direction of polarization is changed. A photoelastic modulator is used to automatically change the direction of polarization. It passes right and left circularly polarized radiation by rotating the plate  $\frac{\lambda}{4}$  by angles  $\pm 45^\circ$ . To separately calculate the number of photons that have right-circular polarization  $N_+$ , and separately the number of photons with left-circular polarization  $N_-$ , then to recalculate from them the degree of polarization  $\rho = \frac{N_+ - N_-}{N_+ + N_-}$ , a two-channel photon counter can be used. There are commercial two-channel photon counters (for example, SR 400). But in the setup described below, a homemade photon counter was used, since it was assumed that the PL would have a small degree of polarization, therefore, the complete symmetry of the two channels was important. The counter consisted of a dual four-bit binary counter microchip with individual synchronization and reset KP1533ИЕ19, which was controlled by an Atmega 162 programmable microcontroller equipped with an external 16 MHz clock source (Figure 19). Using the microcode, you can set the duration of the photon counting gate  $\Delta t$ , as well as the time of their following  $\tau$ . To count photons in two polarizations, it is necessary to synchronize these gates with the half-periods of modulation of the photoelastic modulator (Figure 20). So, in the first half-period, the counter counts the number of photons with right-circular polarization and writes them to the first memory register, in the second half-period, the counter counts the number of left-circularly polarized photons and writes them to the second memory register.



Within a second, the samples in each channel are accumulated and then, using a program written in LabView, are stored on the computer disk. An important factor affecting the accuracy of determining the degree of PL polarization is that the durations of the two gates are the same. In this method of measuring the degree of PL polarization, this ensures the use of one counter to form two gates. Two factors influence the choice of gate duration. The first is that the smaller the gate width  $\Delta t$ , the more accurately the degree of PL polarization will be determined (because PEM is strictly  $\pm \frac{\lambda}{4}$  only at the modulation maxima). On the other hand, a narrow gate counts fewer photons, which will affect the level of the detected signal and therefore the noise level. In order to select the gate duration, the degree of polarization of the light having 100% polarization was measured as a function of the gate duration (Figure 21 (a)). As can be seen from the figure, with a gate duration from 1 to 4  $\mu s$ , the degree of polarization remains constant, but with a further increase in the duration, it begins to drop sharply. Therefore, the microcode was written  $\Delta t = 2 \mu s$ . The accuracy of determining the degree of polarization, as well as its stability over time, guarantee the reliability of the obtained experimental data. For example, the above-proposed scheme for measuring the degree of PL polarization makes it possible to stably detect the degree of polarization with an accuracy of up to 0.02%. To determine the zero error, the degree of polarization of the lamp was measured for 2000 s. Since the lamp is a source of unpolarized radiation, the criterion for the accuracy of determining the degree of polarization was the stable zero level in Figure 21 (b).

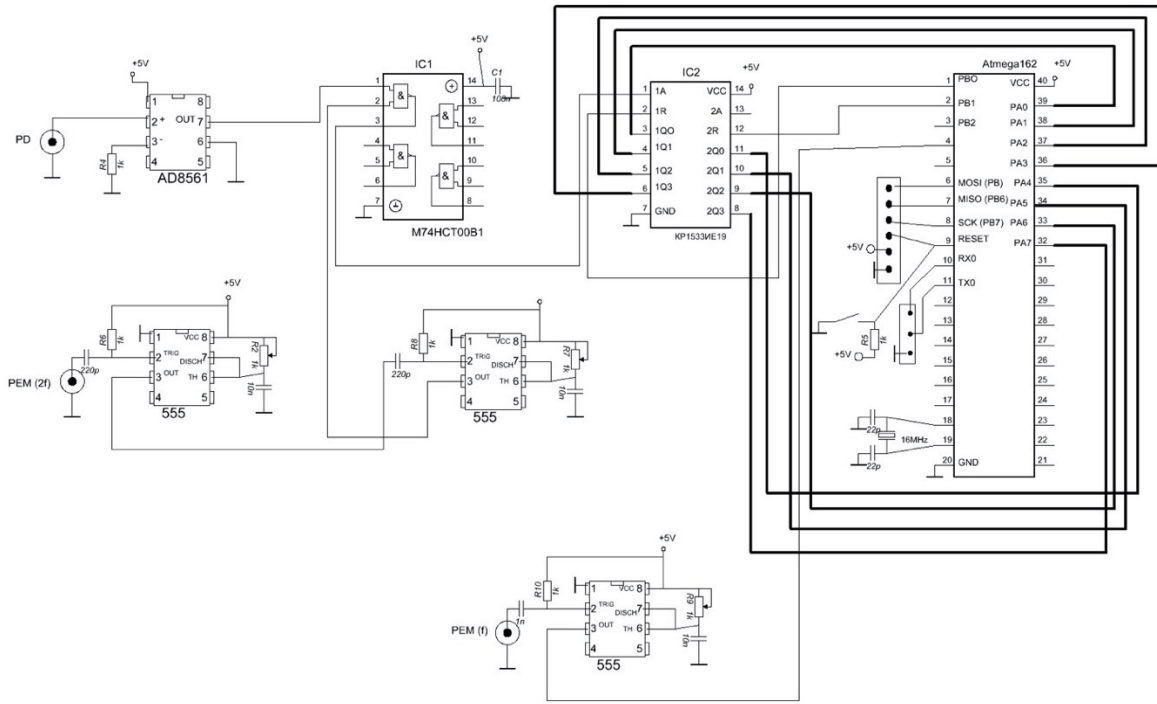


Figure 19 – Scheme of a two-channel photon counter. The pulses of the avalanche photodiode (PD) are fed to the discriminator and are strobed using a 4-AND microchip, after which they are counted as a counter. The second harmonic reference signal from the photoelastic modulator is delayed by an analog timer 555 and determines the moment the gate starts. The end of the gate is set by the microcontroller. For this, the signal of the first harmonic of the photoelastic modulator is fed to the input of the hardware interrupt.

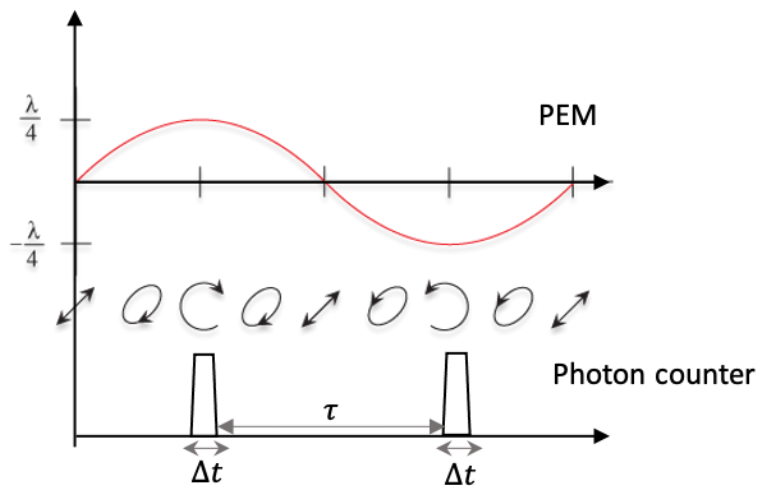


Figure 20 – Schematic diagram of the synchronization of photoelastic modulator (PEM) half-period and photon counter gate.

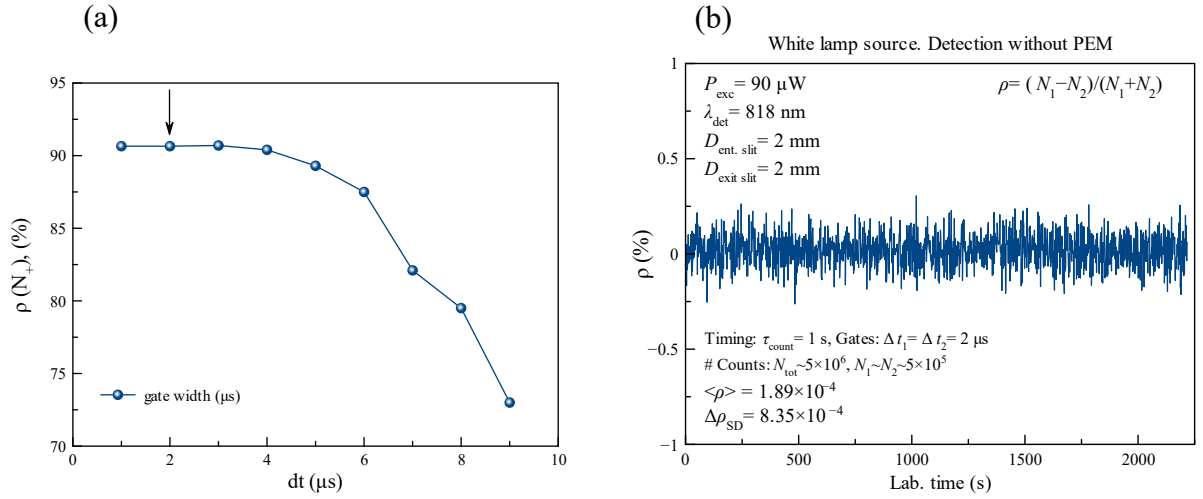


Figure 21 – (a) Dependence of polarization degree on the gate width. The arrow shows the selected gate width; (b) Measurement of lamp polarization degree over time. This figure shows the stability of the signal over time, as well as the accuracy of determining the polarization degree.

All experimental results were obtained through the detection of the polarized PL signal at a wavelength  $\lambda_{\text{det}} = 817 \text{ nm}$  using photodiode. This wavelength corresponds to both a high signal level and a sufficient degree of PL polarization and is indicated in Figure 18 by a vertical black line.

### 2.1.3 Nuclear polarization detection by the Hanle effect

The PL depolarization with an increase in the external transverse magnetic field is called the Hanle effect. The electron spins lose their polarization due to the Larmor precession in the transverse field at the frequency  $\Omega = \frac{g_0 \mu_b B}{\hbar}$ . The dependence of polarization degree on the magnitude of the external field has the form of the Lorentz function and is characterized by the half-width at half-maximum  $B_{1/2}$ :

$$\rho(B) = \rho(0) \frac{B_1^2}{B_1^2 + B^2} \quad (2.1)$$

where  $\rho(0)$  – PL polarization degree in the absence of an external field.

To measure the Hanle curve, light is passed through a PEM (to erase nuclear polarization), focus on the sample, and then the PL in reflection geometry passes through the quarter wave plate  $\frac{\lambda}{4}$  polarizer, is focused on the spectrometer slit and is detected by a diode. In our experiments, to create a transverse magnetic field around the sample, a pair of coils was installed, which create a field perpendicular to the pumping beam with magnitude up to 400 G. By measuring the Hanle curves at different pump powers  $P$ , one can obtain the dependence  $B_{1/2}(P)$ , which is then extrapolated to zero power, and by the formula  $B_{1/2}(P = 0) = \frac{\hbar}{g_0 \mu_b T_s}$  find the lifetime of an electronic spin  $T_s$ . Figure 22 shows the Hanle curves (colored dots) measured on a sample  $n$ -GaAs ( $n_d = 2 * 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ) for three pump powers: 5, 15 и 25 mW at detection wavelength  $\lambda_{det} = 816 \text{ nm}$ . The resulting curves were fitted by Lorentz functions (colored lines) with adjustable parameters  $B_{1/2}$ . Then the dependence was built  $B_{1/2}(P)$  (Figure 22, inset) and the electron spin lifetime was calculated:  $T_s = 2.7 \text{ ns}$ .

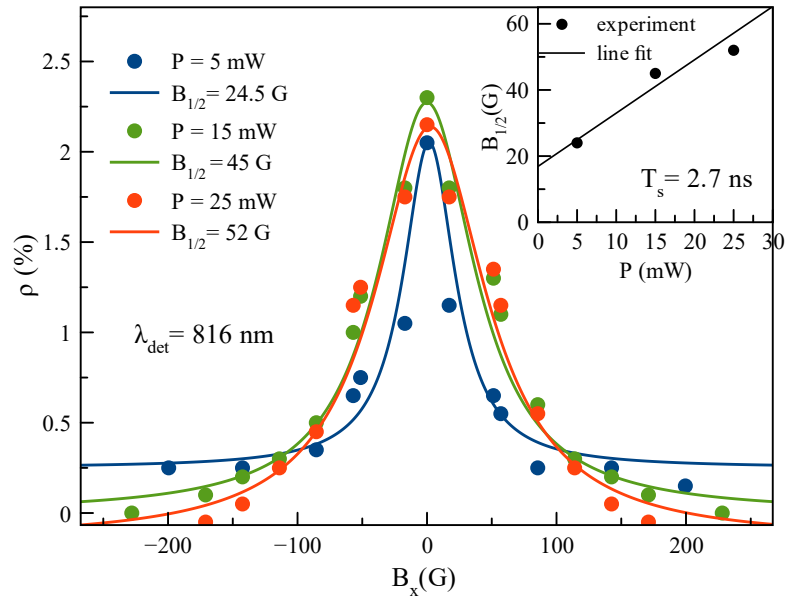


Figure 22 – PL depolarization curves (Hanle curves) measured at the detection wavelength  $\lambda_{det} = 816 \text{ nm}$  for pump powers 5, 15 и 25 mW (blue, green and red dots). Fitting the obtained curves by Lorentz functions (blue, green and red lines). Dependence of the half-width at half-height of the Lorentz functions  $B_{1/2}$  from pump power (inset), from which the electron spin lifetime is obtained:  $T_s = 2.7 \text{ ns}$ .

The Hanle effect is the basis for experiments to detect nuclear polarization achieved by optical cooling. This experiment consists of two stages. First, there is an optical cooling of nuclear spins. For this, the sample is illuminated with circularly polarized light during the time  $t_{cooling}$  at longitudinal

magnetic field  $B_z$ . During optical cooling, a nuclear field is accumulated due to the hyperfine interaction of nuclear spins with polarized electrons. Then the field  $B_z$  is switched off and the small measuring transverse field is switched on:  $B_x < B_L$ , the nuclear field  $B_N$  achieved in the first stage rotates towards the field  $B_x$ . As a result, the electrons feel the total transverse field  $B_x \pm B_N$  at the first moment of time depolarize in it according to the Hanle effect. Then the nuclear field  $B_N$  relaxes due to spin-lattice relaxation and the electronic polarization is restored. An example of such an experiment is shown in Figure 23 for the cooling time  $t_{cooling} = 4$  min and for longitudinal magnetic field  $B_z = 100$  G. The jump in the polarization degree at the moment of time  $t = 360$  s corresponds to the beginning of the second stage, when the transverse field is turned on  $B_x$  and the electron spin is depolarized in the field  $B_x + B_N$ . The magnitude of this jump is related to the nuclear field obtained during the optical cooling. There are several methods for extracting it from the experimental curve. One of the simplest methods is to fit the initial section of the second stage with a linear function  $\rho(t) = a * (t - 360c) + \rho_0$ , where  $\rho_0$  – polarization degree at the first moment of time of the second stage, associated with the nuclear field. The adjustable parameters were the quantities  $a$  and  $\rho_0$  (Figure 23 (a)).

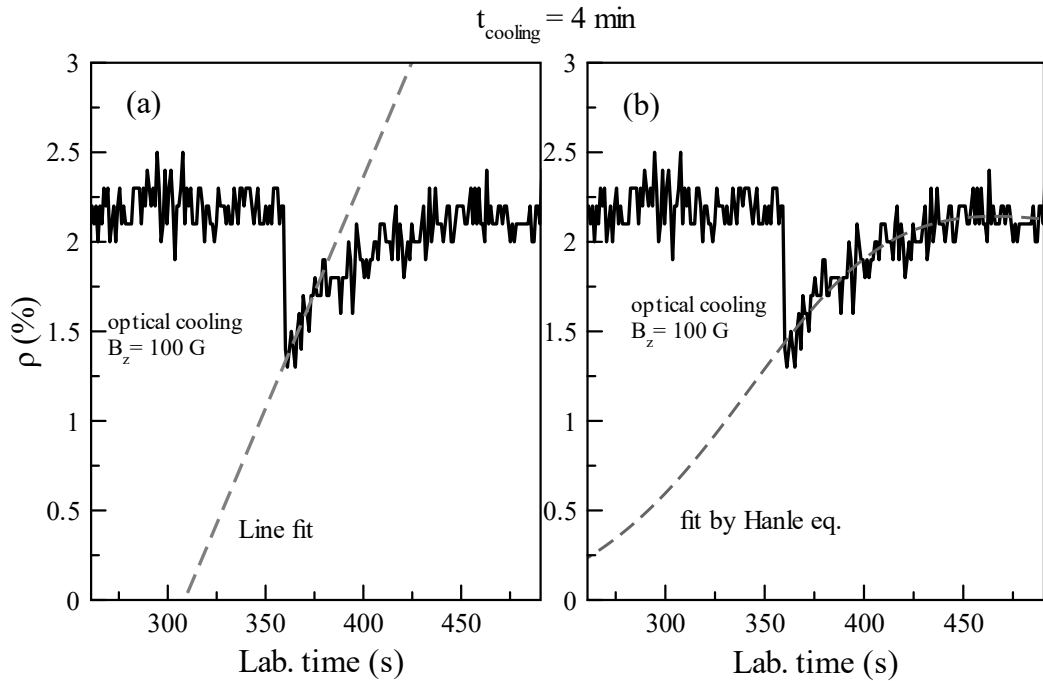


Figure 23 – An example of a two-stage experiment, in which first the polarization of nuclear spins occurs by the optical cooling method, and then the resulting nuclear field is measured. To extract the nuclear field, one can use (a) a linear fit of the second measurement stage (gray dashed line) or (b) a fit that takes into account the entire polarization dynamics (gray dashed line).

However, the linear fit only takes into account the linear polarization dynamics in the first few seconds. In this case, further nonlinear dynamics in the fitting is not taken into account in any way, which can affect the accuracy of determining the nuclear field. Therefore, a more reliable way of

processing the experimental curve is to fit the entire polarization dynamics in the second stage (Figure 23 (b)). This fitting will be used further in nuclear spin warm up spectroscopy and is described in detail in Section 2.1.4.

The efficiency of optical cooling and, as a consequence, the magnitude of the nuclear field is influenced by the duration of cooling  $t_{cooling}$  and longitudinal magnetic field magnitude  $B_z$ . The form of two-stage curves, as well as the values of nuclear fields (inset) depending on the cooling time are shown in Figure 24. Thus, as an example, curves were obtained for 2, 3, and 4 minutes of cooling in a longitudinal field  $B_z = 100$  G. As can be seen from Figure 24, as the cooling time increases, the polarization jump grows, which indicates an increase in the nuclear field. Nuclear fields were extracted from the obtained two-stage curves (by fitting the whole dynamics of the second stage). The inset shows the dependence of nuclear fields on the cooling duration (blue dots). This dependence is fitted by a linear function, which at  $t_{cooling} = 0$  gives zero nuclear field. On time scales of several minutes, the resulting dependence can be considered linear. An increase in the nuclear field with an increase in the duration of optical cooling is predictable: during the cooling stage, nuclear polarization propagates from the donor to the periphery due to spin diffusion (see Section 1.2.4.). And the longer this stage, the further from donors the nuclear polarization will propagate. However, with prolonged cooling (for an hour or more), saturation of nuclear polarization occurs.

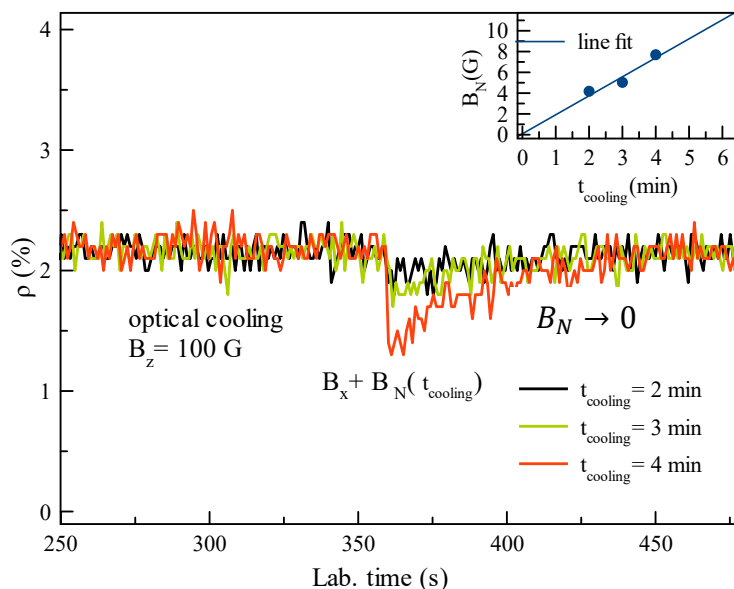


Figure 24 – Examples of two-stage curves for cooling times  $t_{cooling} = 2, 3$  and 4 minutes at longitudinal magnetic field  $B_z = 100$  G. Dependence of the nuclear field on the cooling time (inset, points). Linear fit of the resulting dependency (inset, line).

The form of two-stage curves, as well as the values of nuclear fields (inset) depending on the longitudinal field  $B_z$  at fixed cooling time  $t_{cooling} = 4$  min are shown in Figure 25.

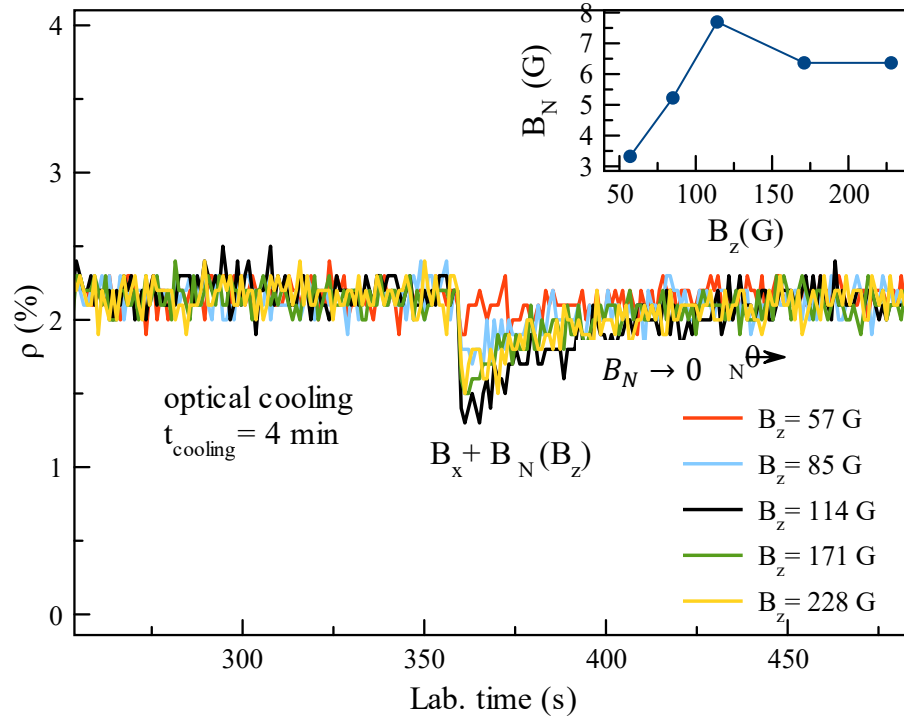


Figure 25 – Examples of two-stage curves for cooling times  $t_{cooling} = 4$  min in longitudinal magnetic fields:  $B_z = 57, 85, 114, 171$  and  $228$  G. Dependence of the nuclear field on the value of the longitudinal field (inset, points).

As can be seen from Figure 25, with an increase in the longitudinal field, as well as with an increase in the cooling time, the jump in the polarization degree increases; therefore, the nuclear field also increases. However, in fields of about 100 G, the growth stops and saturation occurs.

For each sample, the cooling time and the value of the field  $B_z$  are selected empirically. Figures 24 and 25 are just examples of how the shape of the curve changes with increasing cooling time and  $B_z$ . From the examples above, the optimal time would be  $t_{cooling} = 4$  min and field  $B_z = 100$  G.

For the nuclear spin warm up spectroscopy, between the optical cooling stage and the measurement stage, there is also a stage of applying an oscillating magnetic field during several seconds, which erases the nuclear polarization achieved as a result of cooling to a certain value, which depends on the frequency and amplitude of the oscillating field. To implement this stage, radio frequency (RF) coils were designed, which were controlled through a generator (see the experimental setup in Figure 17). For them, the amplitude-frequency characteristic was measured, which is linear in the required frequency range (from units of Hz to one hundred kHz). In order to measure the many-stages curves, a

LabView program was created, through which it was possible to set various durations of all stages, turn on or off magnetic fields (both static and oscillating) of a certain amplitude. The curves obtained using this program were automatically saved to a file in the form of the dependence of PL polarization degree on time (for example, the curves shown in Figures 24 and 25), and then the obtained data were processed in the Magicplot and Matlab programs.

#### 2.1.4 Nuclear spin warm up spectroscopy technique

The experimental setup described above makes it possible to lower the nuclear spin temperature by the optical cooling method in a longitudinal magnetic  $B_Z$  followed by adiabatic demagnetization into the local field. If to nuclear spins cooled in this way to a certain temperature ( $\sim 10^{-5} K$ ) in the presence of static magnetic field  $B_{z,x} = \mu_N \hbar \omega_0$  apply an oscillating magnetic field at a resonant frequency  $\omega_0$ , then the NSS will absorb it. Such resonant absorption corresponds to an increase in the spin temperature by several orders of magnitude. The difference between the temperatures before and after the application of an oscillating magnetic field is associated with the absorption coefficient of the NSS at a given resonant frequency  $\omega_0$ . By scanning the frequency of an oscillating magnetic field with a constant static magnetic field, an absorption spectrum can be obtained. This is the principle behind the Optically Detectable Nuclear Magnetic Resonance (ODNMR) method discussed in Chapter 1. The nuclear spin warm up spectroscopy, described in this thesis, has a similar principle to the ODNMR method, but with some peculiarities: the ability to measure absorption spectra in zero and weak (comparable to the local field) static magnetic fields. Another important feature is the ability to obtain absorption spectra in a longitudinal experimental geometry: when the oscillating and static magnetic fields have the same direction. It is known from classical NMR that in such geometries the absorption rapidly decreases with an increase in the static magnetic field; however, using the warm up spectroscopy method, it is possible to measure absorption spectra in longitudinal geometries for fields  $B_{z,x} \leq 15$  G. Thus, in the method proposed in this thesis, it is possible to measure absorption spectra in four configurations of oscillating and static magnetic fields: in two longitudinal (when  $B_Z || B_Z^1$  or  $B_x || B_x^1$ ) and in two perpendicular (when  $B_Z \perp B_x^1$  or  $B_x \perp B_Z^1$ ). A schematic representation of these configurations for the crystallographic axes of sample S1, for which the absorption spectra were obtained in all these configurations, is shown in



Figure 26. The oscillating magnetic field is indicated as  $B_1$ , and its direction is indicated by a purple arrow. Directions of static magnetic fields  $B_{z,x}$  indicated by blue arrows. The direction of the pump beam is indicated by a red arrow.

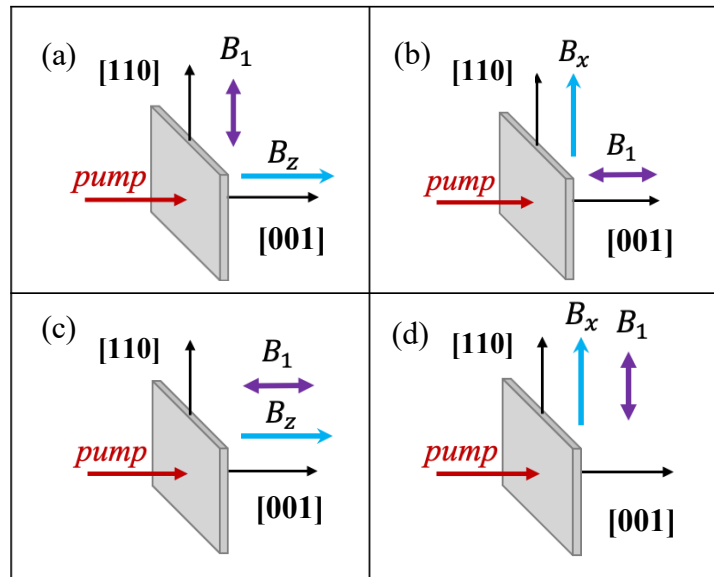


Figure 26 – Schematic representation of four experimental geometries: (a), (b) transverse geometries; (c), (d) longitudinal geometries. The directions of the oscillating, static magnetic fields and the pump beam are indicated by purple, blue, and red arrows, respectively.

For clarity, it should be emphasized that the coils that create the  $B_{z,x}$  fields also are used for optical cooling (the coil that creates  $B_z$ ), for the measuring stage (the coil that creates  $B_x$ ), and also during the application of the oscillating magnetic field (a coil that creates a  $B_z$ , or a coil that creates a  $B_x$  are used).

Classical experiments for obtaining absorption spectra consist of four stages: preparatory, optical cooling followed by adiabatic demagnetization, the stage of applying an oscillating magnetic field, and the measurement stage. Let's dwell in more detail on their physical principles.

Since each four-stage experiment corresponds to the measurement of the absorption coefficient at a fixed frequency of the oscillating field, then to obtain the absorption spectrum from such experiments, it is necessary to do several dozen (usually 50-70 experiments to obtain one absorption spectrum). The oscillating magnetic field does not completely erase the nuclear field achieved as a result of optical cooling, and at the measurement stage, the nuclear field also may not completely relax. Therefore, in order to completely erase the nuclear field remaining from the previous experiment (and align the nuclear spin temperature with the lattice temperature), a preparatory stage was introduced, at

which an oscillating field at a frequency of 3 kHz was applied during 60 seconds in the dark and in zero static magnetic field. This frequency corresponds to the frequency of the maximum absorption of the NSS in the presence of only dipole-dipole interactions. Due to this stage, it can be assumed that optical cooling in each new experiment begins with the same nuclear spin temperature, equal to the lattice temperature:  $\theta_N = \theta_{latt}$ . A schematic representation of all four stages is shown in Figure 27 (a), and the experimental curves obtained using such a four-stage protocol are shown in Figure 27 (b).

The next stage is optical cooling during 120 seconds in a longitudinal magnetic field  $B_Z = 150$  G followed by adiabatic demagnetization. The sample under study was irradiated with circularly polarized light and the electron spins acquired a non-zero average polarization (from 2% to 9% at a detection wavelength  $\lambda_{det} = 817$  nm depending on sample). Due to the hyperfine interaction between nuclear spins and electron spins localized on donors, nuclear spins near the donor are polarized in a few ms, and then nuclear spin polarization propagates to the periphery due to spin diffusion during the entire time of optical cooling. The values of the nuclear field and spin temperature after cooling depend on the duration of cooling and on the longitudinal field  $B_Z$ . Optical cooling time 120 second and field  $B_Z = 150$  G were chosen empirically. A further increase in the  $B_Z$  field leads to heating of the magnetic coils, and 120 seconds is sufficient to cool the nuclei to a low temperature, at which the effect of nuclei warming up by an oscillating field will be noticeable. It is also worth noting that in this original part of the thesis, the goal was not to achieve the minimum possible nuclear spin temperature. During optical cooling, the nuclear field  $B_N(t)$  accumulated, and the spin temperature decreased:

$$B_N(t) = \frac{b_N \hbar \overline{\gamma_N} I(I+1)}{k_b} B_Z \beta(t), \quad (2.2)$$

where  $\beta(t) = 1/\Theta_N(t) = \beta(0)e^{\frac{t}{t_p}}$  – inverse nuclear spin temperature during cooling,  $\beta(0)$  – inverse nuclear spin temperature before cooling ( $\beta(0) = \frac{1}{\theta_{latt}}$ ),  $t_p$  – cooling time ( $t_p = 120$  s),  $b_N$  – nuclear field magnitude at 100% nuclear spin polarization,  $\overline{\gamma_N} = \frac{\gamma_N(Ga^{71}) + \gamma_N(Ga^{69}) + \gamma_N(As^{75})}{3}$  – average gyromagnetic ratio for isotopes GaAs.

After optical cooling, the pumping was turned off (the beam was obscured by the automatic shutter), and the external field  $B_Z$  turned off adiabatically slowly (in 20 ms). This lowers the nuclear spin temperature achieved as a result of optical cooling  $\theta_N$  by several orders of magnitude to the value  $\theta_N^{ad}$ . From the law of entropy conservation in the process of adiabatic demagnetization, one can obtain the temperature relationship  $\theta_N$  and  $\theta_N^{ad}$ :

$$\theta_N^{ad} = \theta_N \sqrt{\frac{B_L^2}{B_Z^2 + B_L^2}} \quad (2.3)$$

From eq. (2.3) it is seen, that  $\theta_N^{ad}$  differs from  $\theta_N$  by about  $\frac{B_L}{B_Z} \sim 0.007$  times (provided that  $B_L \ll B_Z$ ). In experiments on sample S1 according to the cooling protocol described above, the nuclear spin temperature was reached  $\theta_N^{ad} \approx 300 \mu\text{K}$  at the lattice temperature  $\theta_{latt} = 20 \text{ K}$ .

At the third stage, an oscillating magnetic field was turned on in the dark for 3 seconds. Darkness was necessary in order to exclude the influence of polarized electrons on nuclear spins. The time  $t_{RF} = 3 \text{ s}$  was chosen empirically from the condition that at the frequency of maximum absorption, the oscillating magnetic field during the time  $t_{RF}$  erases the nuclear polarization less than twice and the associated change in the degree of PL polarization can be unambiguously detected (in Figure 27, such a change in the degree of polarization is denoted as  $\rho_{dark}$ ). As noted above, each four-stage experiment takes place at a fixed frequency  $f$  and amplitude  $B_1$  ( $B_Z^1$  or  $B_x^1$ ) oscillating magnetic field and at fixed value of static magnetic field  $B_Z$  or  $B_x$ . For fields  $B_{Z,x} = 0 - 15 \text{ G}$  absorption spectra were measured in the frequency range from 100 Hz to 40 kHz. For fields  $B_{Z,x} = 20 - 90 \text{ G}$  frequency range was from 1kHz to 130 kHz. For longitudinal geometries, the amplitude of the oscillating field changed with an increase in the magnitude of the static field:  $B_1 = 0.1 - 1 \text{ G}$ , since in such geometries the absorption rapidly decreases with an increase in the static field. For transverse geometries, the amplitude of the oscillating field was fixed for all values of the static fields:  $B_1 = 0.1 \text{ G}$ . If the frequency of the oscillating magnetic field coincides with the frequency of the transition between nuclear energy levels (the splitting of nuclear levels can be purely Zeeman, quadrupole, or dipole-dipole in fields  $B_{Z,x} < B_L$ ), then the populations of these levels are equalized due to the absorption of oscillating magnetic field power. This leads to an increase in the nuclear spin temperature and to the erasure of the nuclear field (in case there is a static magnetic field, because  $B_N \sim \beta B_{Z,x}$  and at  $B_{Z,x} = 0$  nuclear field is absence, and the NSS is characterized only by the spin temperature).

The last stage is necessary to measure the nuclear field (or spin temperature), which remained after applying oscillating magnetic field at a given power. For this, the pumping was switched on again (the shutter was opened) and together with it a small measuring static transverse field was switched on:  $B_x \sim 1 \text{ G}$ . At the same time, the electronic spins feel not only the field  $B_x$ , but a total field:  $B_{tot} = B_x \pm B_N(f)$ , where  $B_N(f)$  – the nuclear field that remains after exposure to an oscillating magnetic field at the frequency  $f$ . It is directed the same way as the field  $B_x$ , therefore  $B_{tot}$  for electron spins is a purely transverse field. The sign “ $\pm$ ” reflects the sign of the spin temperature, which was controlled at the stage of optical cooling by the mutual direction of the mean electron spin and field  $B_Z$ . Thus, at the first moment of time at the fourth stage, the average electron spin feels the transverse field  $B_{tot}$  and,

according to the Hanle effect, it depolarizes (Figure 27 (b) time  $t_m = 180$  s). To understand of Figure 27 (b) it is important to note that at the frequency of maximum absorption, the nuclear field is erased significantly, therefore, the contribution of  $B_N(f)$  to the value of  $B_{tot}$  is much smaller than at other frequencies, and the electron spin is depolarized weaker (PL polarization degree, which is detected in the experiment varies from 3% to  $\rho_{dark} = 2\%$ ). This situation corresponds to the green experimental curve in Figure 27: in zero static magnetic field, the frequency of maximum absorption for sample S1 is  $f = 12$  kHz. The opposite case is an experiment in the absence of an oscillating magnetic field (blue experimental curve in Figure 27 (b)). Here, at the third stage, an oscillating field was not applied, therefore  $B_N$  almost did not change in 3 seconds of darkness, electrons feel the maximum  $B_{tot}$  and depolarize strongly (PL polarization degree changes from 3% to  $\rho_{dark} = 1\%$ ). Measurement without an oscillating magnetic field determines the zero level in the absorption spectra, and such measurement is necessary to calculate the warming up rate of nuclear spins. Further, during the entire last stage, which lasted 200 seconds, the nuclear field relaxed due to spin-lattice relaxation, which led to the restoration of electronic polarization. All four stages were controlled automatically via a computer using a LabView program which was created specifically for these experiments. The program made it possible to automatically change the frequency of the oscillating field from experiment to experiment, saving data for each frequency (PL signal in two channels of the photon counter depending on time) into a file at a fixed static magnetic field. In this case, the stability of the signal made it possible to carry out such long-term measurements.

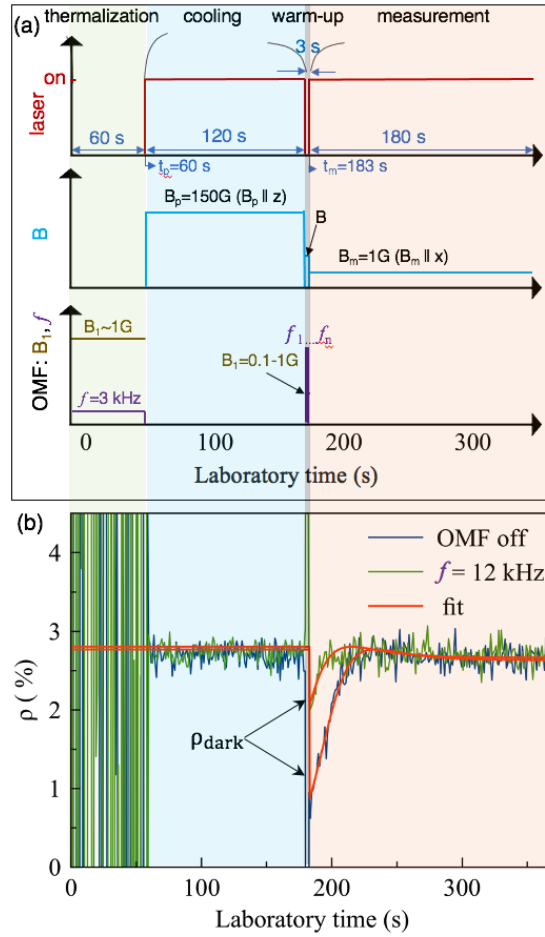


Figure 27 – (a) Four-stage experimental protocol; (b) Experimental curves obtained using a four-stage protocol for sample S1. The change in the PL polarization degree  $\rho$  was measured as a function of time. The green curve corresponds to the experiment at the frequency of maximum absorption in zero static magnetic field:  $f = 12$  kHz. The blue curve corresponds to the experiment in the absence of an oscillating magnetic field. The red curves are adjustable and are plotted according to eq. (2.7).

To obtain the warming up rate of the NSS by an oscillating field at a given frequency, it is necessary to carry out some mathematical operations. The nuclear field that has accumulated at the optical cooling stage  $B_{N0}$  is associated with the nuclear field at the first time instant of the measurement stage  $B_N$  according to equation:

$$B_N = B_{N0} e^{-t_{RF} \left( \frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_{RF}(f)} \right)}, \quad (2.4)$$

where  $\frac{1}{T_1}$  – the warming up rate of the NSS due to the spin-lattice relaxation in the dark,  $\frac{1}{T_{RF}(f)}$  – warming up rate due to the influence of an oscillating magnetic field at frequency  $f$ .

A similar equation can be written for the case when an oscillating magnetic field was not applied. Then the nuclear field at the first time instant of the measurement stage  $B'_N$  will be different:

$$B'_N = B_{N0} e^{-\frac{t_{RF}}{T_1}}. \quad (2.5)$$

Dividing equation (2.5) by (2.4), we can express the warming up rate  $\frac{1}{T_{RF}(f)}$ :

$$\frac{1}{T_{RF}}(f) = \frac{1}{t_{RF}} \ln \left( \frac{B'_N}{B_N(f)} \right). \quad (2.6)$$

This value  $\frac{1}{T_{RF}}$  is the ordinate axis in the absorption spectra presented below.

To extract from the experimental curves the quantities  $B'_N$  and  $B_N(f)$ , the last measuring stage of each curve was fitted by the equation:

$$\rho(t) = \rho_0 \frac{B_{1/2}^2}{B_{1/2}^2 + (B_x + b + (B_N - b) \exp(-\frac{t-t_m}{T_1}))^2}, \quad (2.7)$$

where  $B_{1/2}$  – half-width at half-height of the Hanle curve ( $B_{1/2} = 10$  G for sample S1 at pump power is equal to 15 mW and detection wavelength 817 nm),  $B_x = 1$  G – measuring field,  $t_m = 180$  s – start time of the measurement stage,  $b$  – nuclear field, which is created by polarized electrons during the measurement stage. It is responsible for the level to which the PL polarization degree goes,  $T_1$  – nuclear spin-lattice relaxation time at the pump presence. For sample S1  $T_1 = 25$  second. The fitting parameter was the nuclear field  $B_N$ , which remained at time  $t_m$ , which is necessary to calculate the absorption rate  $\frac{1}{T_{RF}}$ .

Thus, each experimental curve was fitted by eq. (2.7), which gave a set of values  $B_N(f)$  and one common value  $B'_N$  for the absorption spectrum in a given static magnetic field. Examples of fit curves are shown in Figure 27 (b) with red lines.

It should be noted that this fit has an advantage over the method of obtaining the absorption rate simply by the magnitude of the degree of polarization  $\rho_{dark}$  at the time  $t_m$ , since when fitting the entire dynamics of the measurement stage, the degree of accuracy with which the fields  $B_N(f)$  and  $B'_N$  are determined is much higher, and hence the noise level of the absorption spectra will be insignificant.

In this way, the absorption (warming up) rates were obtained for all four experimental configurations for sample S1, for two configurations for sample S2 and for one configuration for sample S3, the analysis of which will be given in Chapters 3 and 4.

## 2.2 Adiabatic demagnetization in a rotating frame

### 2.2.1 Sample and experimental setup

In experiments on adiabatic demagnetization in a rotating frame, we studied a sample grown by molecular beam epitaxy on a GaAs substrate. It consisted of 13 undoped quantum GaAs/Al<sub>0.35</sub>Ga<sub>0.65</sub>As with width from 2.8 nm to 39.3 nm, separated by barriers 30.9 nm width. The sample was placed in a liquid helium cryostat, which cooled the sample to a temperature  $T = 5.5$  K. To measure the photoluminescence spectrum, the sample was pumped with circularly polarized light, the source of which was a laser with an output energy  $E_{exc} = 1.55$  eV, passing through the quarter-wave plate (Figure 28). Photoluminescence (PL) in reflection geometry was collected in a parallel beam by a lens, modulated by a chopper connected to a lockin, scattered by a spectrometer, and detected by an avalanche photodiode. The PL spectrum is shown in Figure 29 for the example of a 19.7 nm quantum well. The maximum PL intensity is observed at an energy of 1.5267 eV, which corresponds to the recombination of a neutral exciton. Therefore, for all subsequent measurements, the laser diode was tuned to a pump energy close to the resonance:  $E_{exc} = 1.5276$  eV.

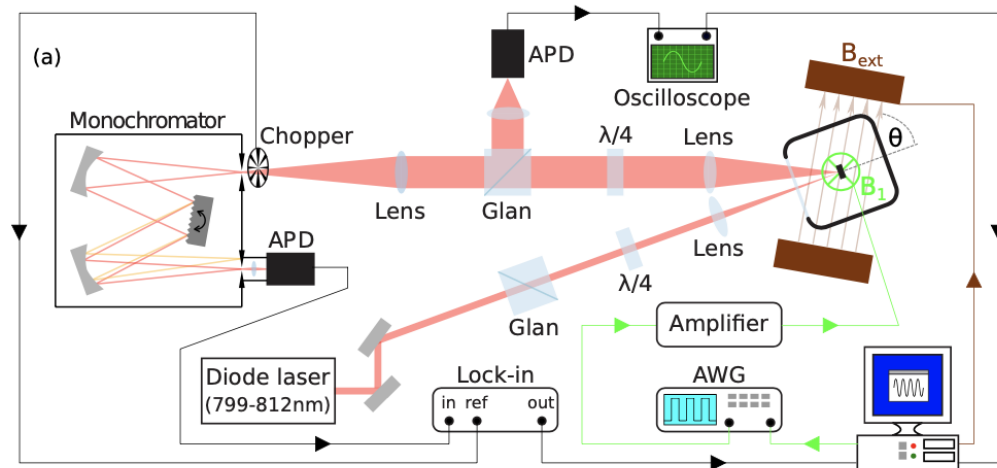


Figure 28 – Experimental setup for nuclear spins adiabatic demagnetization experiments in a rotating frame.

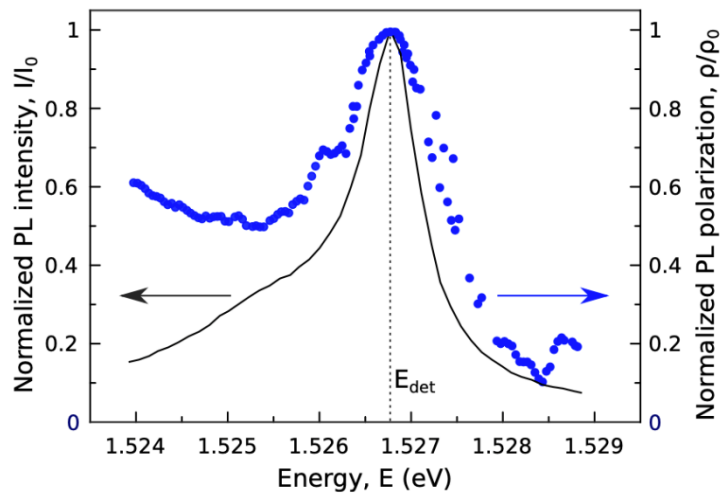


Figure 29 – The photoluminescence spectrum for a 19.7 - nm quantum well, obtained at a temperature of  $T = 5.5$  K (black curve). The PL polarization spectrum is shown by blue circles. The dashed vertical line marks the detection energy used in the measurements.

To realization of adiabatic cooling in a rotating coordinate system, a radio-frequency coil was placed inside the cryostat next to the sample, the current through which was supplied from a functional generator (AWG) and controlled through a computer. It was also possible to set a sequence of pulses at different amplitudes, phases and different durations. External static magnetic field  $B_{ext}$  field was created by a coil located around the cryostat. The direction of the external field had an inclination of  $\theta = 66^\circ$  relative to the sample growth axis. This was necessary so that, having one coil, it was possible to measure the Hanle depolarization curve (for this, the field component transverse to the pumping beam is needed) and to create nuclear polarization (using the longitudinal component).



### 2.2.2 Experimental technique for nuclear spin adiabatic cooling in a rotating frame

The experimental protocol for adiabatic cooling of the NSS in a rotating coordinate system consisted of three main stages. The first stage was the creation of nuclear spin polarization through hyperfine interaction with polarized electrons. To create a non-zero polarization of electron spins, the sample was pumped with circularly polarized light in an external magnetic field  $B_{ext} = 7.5$  kG. The direction of circular polarization of light was chosen so that the external and nuclear fields had opposite directions. An important point is that in this way it was possible to create polarization of only the spins of the  $^{75}\text{As}$  isotope, while the spin polarization of  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{71}\text{Ga}$  isotopes was erased during the entire first stage by scanning an oscillating magnetic field near their resonance frequencies (7.64 and 9.7 MHz at the field  $B_{ext} = 7.5$  kG). The time of the first stage was determined by the nuclear spin dynamic. So, for example, if all three isotopes are pumped at an angle of inclination of the external field  $\theta = 66^\circ$ , then the nuclear field reaches a value that compensates for the external field in 300 seconds (the moment when the nuclear field completely compensates for the external field is detected by the recovery and plateau of the PL polarization degree). However, in the case when the polarization of the nuclear spins of the Ga isotopes is erased, then pumping the nuclei of the  $^{75}\text{As}$  isotope takes almost three times as long: 1000 seconds.

The second stage begins after the nuclear field compensates for the external:  $B_N = -B_{ext}$  (Figure 30 (b)). After that, the generator sends a sequence of  $\frac{\pi}{2}$  pulses with amplitude of  $B_1 = 21$  G, which rotate the average nuclear magnetization  $M_{As}$  for isotope  $^{75}\text{As}$  perpendicular to the direction of the static field  $B_{ext}$  (Figure 30 (c)). Next, the supporting radio-frequency field  $b_0$  was switched on, shifted by  $\varphi = 90^\circ$  or  $\varphi = 270^\circ$  in phase relative to the  $\frac{\pi}{2}$  pulse (Figure 30 (d)):

$$B_1(t) = 2b_0 \cos(\gamma_{As} B_{ext} t + \varphi). \quad (2.8)$$

If we go to a coordinate system rotating with the frequency of the Larmor precession of the  $^{75}\text{As}$  isotope ( $\omega_L^{As} = \gamma_{As} B_{ext}$ ), then the supporting field will have a constant component directed along or against the direction of the turned average magnetization  $^{75}\text{As}$ . At constant amplitude of the supporting field ( $b_0 = 21$  G) the nuclear spin polarization of  $^{75}\text{As}$  does not decay within 3 seconds, although in the absence of a supporting field it decays in about  $T_2^* = 200 \mu\text{s}$ . This suggests that the nuclear spins of the

$^{75}\text{As}$  isotope reach thermodynamic equilibrium in the rotating frame, which is characterized by a spin temperature of the order of several  $\mu\text{K}$ . Next is the process of adiabatic demagnetization: the supporting field was turned off to a certain amplitude  $b$  with a speed of  $10^4$  G/s.

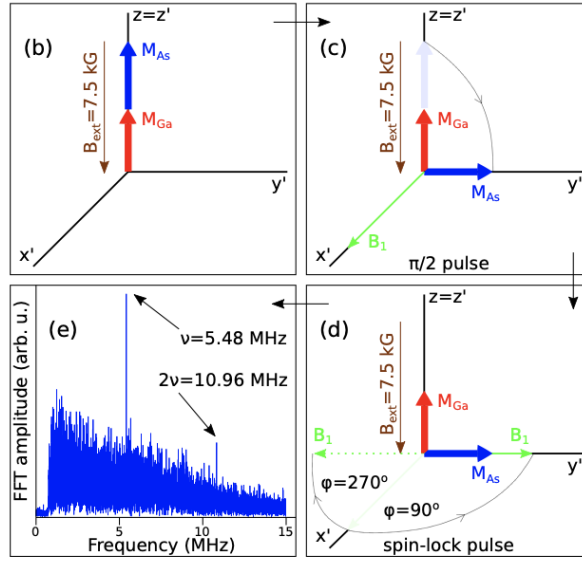


Figure 30 – Experimental protocol on adiabatic demagnetization of nuclear spins in a rotating coordinate system, consisting of three stages: (b) pumping a sample with circularly polarized light in an external inclined magnetic field  $B_{ext} = 7.5 \text{ kG}$  (brown arrow) and the creation of nuclear magnetization  $M_{As}$  (and  $M_{Ga}$  for the case when Ga isotopes were not erased); (c) applying of  $\frac{\pi}{2}$  pulse (green arrow), which rotated the average nuclear magnetization of the isotope  $^{75}\text{As}$  by  $90^\circ$  (blue arrow). The red arrow indicates the direction of the nuclear magnetization created by Ga isotopes if the nuclear field of Ga isotopes is not erased at the first stage; (d) applying of a support pulse, phase-shifted by  $\varphi = 90^\circ$  or  $\varphi = 270^\circ$  relatively to  $\frac{\pi}{2}$  pulse. It has a parallel direction with respect to the turned nuclear magnetization in the rotating frame; then, at the third stage, the support pulse was turned off, the free induction decay signal was measured and its Fourier transform presented in inset (e).

At the third stage, the supporting field was turned off completely and the signal of the free induction decay was measured through oscillations of PL polarization degree with time. For this, the PL signal went through a quarter-wave plate, a Glan-Taylor prism, and was detected by a diode. Fourier transform of the signal gave the 1st and 2nd harmonics of the Larmor precession frequency  $^{75}\text{As}$ :  $\nu$  and  $\nu 2$  (Figure 30 (e)). The change in the PL polarization degree with time occurred due to the dynamic Hanle effect: the average electron spin precessed in the total field:  $B_{tot} = B_{ext} + B_{N,As}(t)$ , where  $B_{N,As}(t)$  – turned

nuclear field of the isotope  $^{75}\text{As}$ , which relaxed during the measurement of the free induction decay signal.

Amplitudes of 1st  $A_1$  and 2nd  $A_2$  harmonics were recalculated into the nuclear fields of the rotated  $^{75}\text{As}$  isotope for each value of the supporting field  $b$ , in which the adiabatic demagnetization occurred:

$$B_{\perp}(0) = 8B_{\parallel} \frac{A_2}{A_1} \tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta\right), \quad (2.7)$$

where  $B_{\perp}(0)$  – nuclear field of the rotated isotope at the first time instant of free induction decay signal measurement ( $B_{\perp}(t) = B_{\perp}(0)\exp(-\frac{t}{T_2^*})$ ,  $T_2^*$  - nuclear field decay time in the absence of a supporting pulse,  $B_{\parallel}$  - the static part of the magnetic field acting on the electron spin (in the absence of pumping of gallium isotopes  $B_{\parallel} \sim B_{ext}$ ),  $\theta$  – the inclination angle of the static field with respect to the growth axis of the sample. The experimental dependence of  $B_{\perp}(0)$  was fitted by eq. (2.9). From the fitting, it is possible to extract the value of the local field  $B_L$ , which in experiments in the rotating frame depends on the orientation of the external magnetic field with respect to the crystal axes.

$$B_{\perp}(0) = B_{\perp}(b_0) \frac{b}{b_0} \sqrt{\frac{b_0^2 + B_L^2}{b^2 + B_L^2}}. \quad (2.9)$$

### Chapter 3. Determination of the local field in bulk $n$ -GaAs

This chapter will present original experimental results on determination of the local nuclear field in a bulk  $n$ -GaAs sample (S1) using the nuclear spin warm up spectroscopy setup described in Section 2.1

The results of this chapter are published in article [52].

#### 3.1 Use of nuclear spin warm up spectroscopy setup for measuring the local field

The setup designed to measure the absorption spectra of a cooled NSS by an oscillating magnetic field, which was described in Section 2. 1., can be used to determine such a fundamental characteristic of the NSS as a local field. In a review of the literature, it was noted that the magnitude of the nuclear spins local field limits the value of the minimum nuclear spin temperature that can be achieved by optical cooling of the NSS followed by adiabatic demagnetization. The physical essence of the local field is explained in Section 1.2.

The four-stage experimental protocol must be modified for local field measurements. So, the main change is that the stage with the application of an oscillating magnetic field is not needed for these experiments. That is, there are three stages left. So, the first stage is keeping the NSS in the dark for 250 seconds. In contrast to warm up spectroscopy, no oscillating magnetic field was applied at this stage, but the time of the first stage was increased to 250 seconds. To determine the local field, it is not necessary to provide the number of experiments that were necessary to obtain the absorption spectra, therefore, the time of the first stage could be increased and during it the oscillating magnetic field was not applied.

The second stage was the stage of optical cooling for 10 seconds in a longitudinal magnetic field  $B_z = 100$  G with further adiabatic demagnetization. Since the NSS was not warmed up by the oscillating field, a cooling time of 10 seconds was sufficient to significantly lower the nuclear spin temperature. Thus, the value of the nuclear spin temperature after adiabatic demagnetization was equal to  $\theta_N^{ad} \approx 5.6 * 10^{-4}$  K.

The third stage was immediately the measuring stage, similar to the fourth stage in experiments on warm up spectroscopy. The transverse magnetic field was turned on  $B_x = 0 - (\pm)6$  G, the electron spins were depolarized in the total field  $B_{tot} = B_x + B_N(t = 250 \text{ s})$  and then, during the third stage, the nuclear field  $B_N$  relaxed according to the law  $B_N(t) = B_N(0)\exp(-\frac{t}{T_1})$ , where  $T_1$  – nuclear spin-lattice relaxation time. An example of an experimental curve obtained according to the described protocol for a measuring field  $B_x = 5.15$  G, is shown in Figure 31.

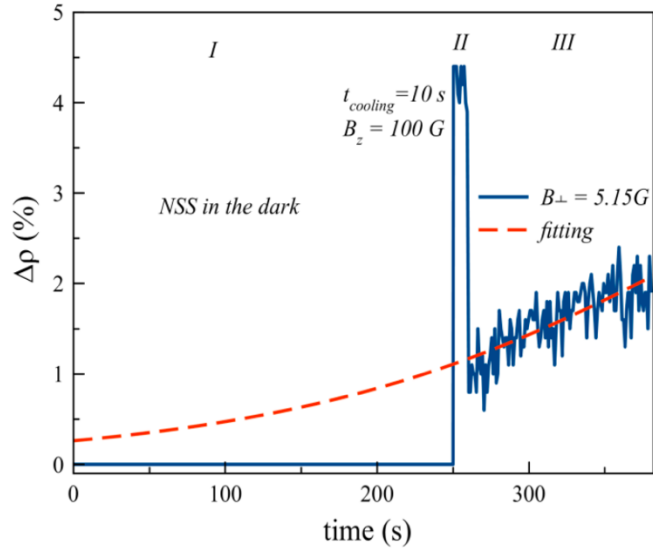


Figure 31 – An example of the time dependence of PL polarization degree, measured according to the three-stage protocol (blue curve): I) the NSS in the dark for 250 s; II) optical cooling in the longitudinal field  $B_z = 100$  G during 10 s; III) Measuring stage in a transverse field  $B_x = 5.15$  G. Fit by eq. (2.10) is indicated by a red dashed line.

### 3.2 Experimental results

According to the protocol described above, a set of curves for various measuring fields  $B_x = 0 - (\pm)6$  G was obtained. The measuring stage of each curve was fitted by the equation (Figure 31, red dotted curve):

$$\rho(t) = \rho(0) \frac{\frac{B_1^2}{2}}{\frac{B_1^2}{2} + (B_x + B_N(t))^2}, \quad (2.10)$$

where  $\rho(0) \sim 4\%$  – PL polarization degree on the optical cooling stage,  $B_{1/2} = 10$  G – half-width at half-height of the Hanle curve,  $B_N(t) = B_N(0) \exp\left(-\frac{t}{T_1}\right)$ . The fitting parameter was the nuclear field at the first time instant of the measurement stage  $B_N(0)$ .

For each value of the measuring field  $B_x$  the nuclear field  $B_N(0)$  was obtained (Figure 32, blue circles).

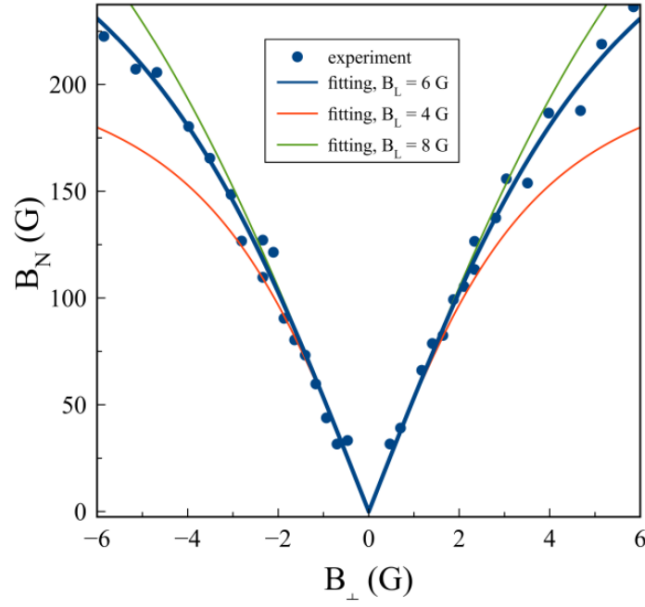


Figure 32 – Experimental dependence of the nuclear field  $B_N(0)$  on the measuring field  $B_x$  (blue circles). Fitting the obtained dependence by eq. (2.11) with the value of the local field as a fitting parameter:  $B_L = 4$  G (red curve),  $B_L = 6$  G (blue curve) и  $B_L = 8$  G (green curve). The best fit is the local field  $B_L = 6$  G.

Further, the resulting dependence  $B_N(0)(B_x)$  was fitted by the equation connecting the nuclear field and the inverse nuclear spin temperature  $\beta(0)$  (red, blue, and green curves in Figure 32):

$$B_N(0) = \frac{b_N \hbar \bar{\gamma}_N}{k_b} \frac{I(I+1)}{3} B_x \beta(0) \sqrt{\frac{B_L^2}{B_L^2 + B_x^2}}. \quad (2.11)$$

The fitting parameter was the local field strength  $B_L$ . The best fit is obtained for  $B_L = (6 \pm 2)$  G. The error in determining the local field lies within the scatter of the experimental points.

### 3.3 Conclusions

In this chapter, using the S1 sample as an example, a method for determining such a fundamental quantity of the nuclear spin system as the local field is shown. For this, an experimental setup for warm up spectroscopy was used with some changes in the measurement protocol. The obtained value of the local field  $B_L = (6 \pm 2)$  G differs from the value calculated for bulk GaAs in the work of D. Paget [12]:  $B_L^2 = (2.1 \pm 0.1) G^2$ . This difference can be associated with the presence of a quadrupole splitting of nuclear spin energy levels due to a low strain in the structure under study. An increase in the local field due to quadrupole effects is described in Section 1.9. using a sample in a microcavity as an example. In the next chapter, the quadrupole effects, in particular in the S1 sample, will be studied in more detail using nuclear spin warm up spectroscopy.

## Chapter 4. Absorption spectra of the nuclear spin system in bulk n-GaAs

This chapter presents the absorption spectra of nuclear spins of bulk  $n$ -GaAs (S1-S3) samples, measured using the nuclear spin warm up spectroscopy technique described in Section 2. 1. To identify the nature of the observed absorption peaks, a model was developed for the theoretical analysis of the obtained absorption spectra for various mutual orientations of static and oscillating magnetic fields. This analysis made it possible to reveal that the observed absorption peaks in zero magnetic field and their evolution in external magnetic fields are a consequence of quadrupole interactions in the samples under study. Also, this analysis made it possible to determine the type and magnitude of quadrupole interactions.

The results of this chapter are published in articles [53, 54].

### 4.1 Absorption spectra at zero magnetic field

The first absorption spectrum in zero magnetic field was obtained in paper [6]. The authors used an experimental protocol that was taken as the basis for measuring the absorption spectra in four experimental configurations in this thesis and is described in Section 2.1. Thus, in paper [6], a bulk  $n$ -GaAs crystal with a donor concentration  $n_d \sim 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  was studied at the lattice temperature  $T = 4.2 \text{ K}$ . To create a low nuclear spin temperature and strong nuclear polarization, the authors used the method of optical cooling with further adiabatic demagnetization. Then, in the dark, an oscillating magnetic field was applied for 30 seconds in zero magnetic field, and then the pumping beam and measuring transverse magnetic field were switched on. It should be noted that this protocol was created by the same team of authors and described in an earlier work [7], where it is noted that the nuclear spin temperature was reached  $\theta_N \sim 10^{-6} \text{ K}$ . The absorption spectrum in zero magnetic field, obtained in [6], is shown in Figure 33 (a).



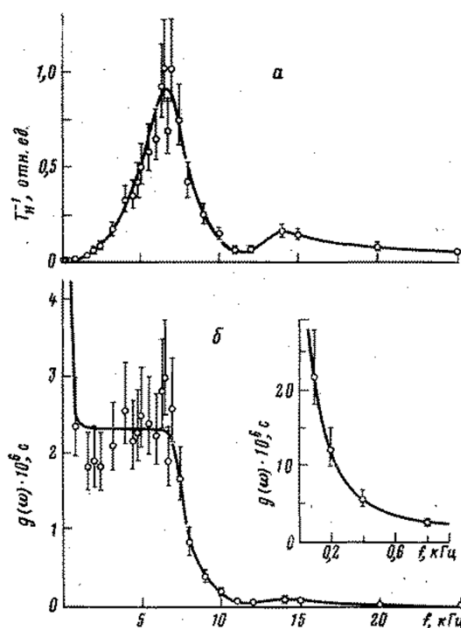


Figure 33 – Absorption spectrum (a) and correlator spectrum (b) at zero static magnetic field of the cooled NSS of the  $n$ -GaAs sample measured at the lattice temperature  $T = 4.2$  K [6].

The spectrum has two absorption peaks: at frequencies of 6 kHz and 14 kHz. It was expected from classical NMR that in zero magnetic field the absorption spectrum should consist of one peak at the frequency of the Larmor precession of nuclear spins in local fields. For GaAs, this frequency is approximately 1.5 kHz. But, as can be seen from Figure 33, a completely different situation is observed. To answer this question, the authors recalculated the absorption spectrum into the correlator spectrum (Figure 33 (b)), dividing the absorption spectrum by the frequency square, and obtained an increase in the low-frequency part of the correlator (how the absorption rate and the correlator are related to each other is described at the end of Chapter 1 in section 1.10.), which they presumably connected with the growth of time  $T_2$  and the approach of the NSS to the polaron state (see Section 1.7.). However, the sign and magnitude of the spin temperature did not correspond to the concept of a nuclear spin polaron, so the nature of these two absorption peaks was not established.

In this thesis, absorption spectra in zero magnetic field were obtained for three samples of bulk  $n$ -GaAs (S1-S3). They are shown in Figure 34.

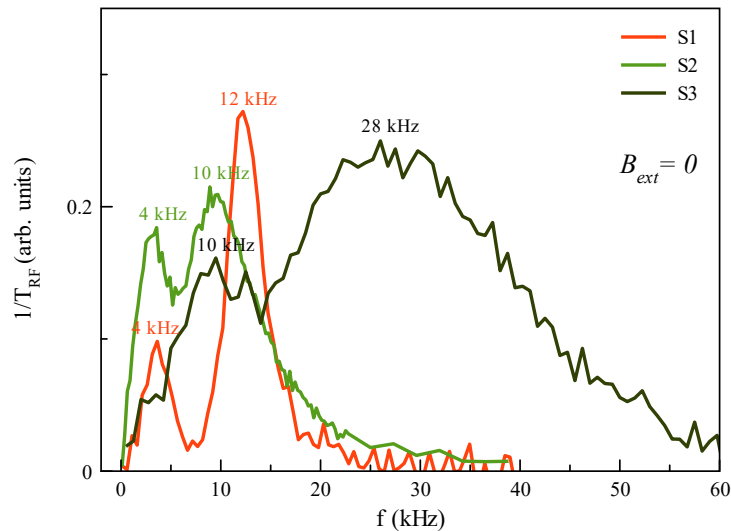


Figure 34 – Absorption spectra in zero magnetic field for samples S1, S2 и S3.

It can be seen from Figure 34 that the obtained absorption spectra also consist of two peaks, rather than one, as was expected for a bulk GaAs crystal. Moreover, the frequency position of the absorption peaks for all samples is different and does not have a characteristic dependence on the donor concentration. For bulk GaAs crystals, it is known that there are no quadrupole interactions in them, and all components of the EFG tensor are equal to zero. However, if we take into account that, during measurements at  $T = 20\text{ K}$  the temperature coefficients of expansion of the sample, the sample holder and the glue on which it was glued are different, then this can cause uncontrolled deformation of a small amount in the samples (in comparison with the deformation caused by for example, by the mismatch of the lattice constants in quantum dots and quantum wells). This deformation leads to quadrupole splitting of the nuclear spin energy levels of the isotopes  $^{75}\text{As}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{71}\text{Ga}$ , which in zero magnetic field appear as two absorption peaks at frequencies  $f > 1.5\text{ kHz}$ .

This kind of deformation is also uncontrollable on the scale of one sample. This proves the experimental fact that the absorption spectrum in zero magnetic field varies from point to point on the sample surface (for these experiments, sample S2 was used). Thus, by changing the position of the pump spot on the sample, one can obtain absorption spectra, starting from the initially expected (which has one peak at a frequency of  $f \sim 1.5\text{ kHz}$ ; the spectrum at point B in Figure 35 has a form close to the expected) and ending with a spectrum with two separate peaks (point C in Figure 35. The spectrum at this point is shown in Figure 24 in green).

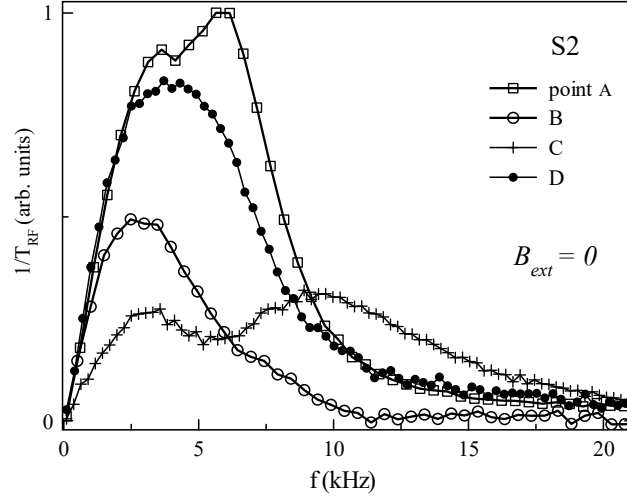


Figure 35 – Absorption spectra in zero magnetic field measured at various points on the surface of sample S2.

Thus, we can conclude that the observed absorption peaks in [6] are most likely also explained by uncontrolled deformation, which leads to quadrupole interactions. It can also be noted that the presence of quadrupole effects in the samples was previously detected mainly by satellite lines in magnetic fields  $B_{ext} \gg B_L$ . However, warm up spectroscopy makes it possible to measure absorption spectra in fields  $B_{ext} \sim B_L$ , in which the quadrupole interaction also manifests itself.

#### 4.2 Analysis of absorption spectra for sample S2

Figure 35 shows that by changing the point on sample S2, one can obtain absorption spectra of different types. To analyze the absorption spectra in external magnetic fields, we selected points on the sample A and B. At point B in zero magnetic field, the absorption spectrum is closest to the expected form (with one absorption peak at a frequency of  $f \sim 2.5$  kHz) and the quadrupole interaction at such a point is minimal. At point A, the zero-field absorption peak has slightly shifted to the high-frequency part and begins to split into two peaks. At this point, the quadrupole interaction should be greater.

For sample S2, the absorption spectra were measured in two experimental configurations: in one longitudinal (when the external field was parallel to the oscillating field:  $B_x || B_x^1$ ) and in one transverse (when the external field is perpendicular to the oscillating:  $B_z \perp B_x^1$ ). In this case, in the longitudinal

configuration (which is not used in classical NMR) for points A and B, absorption spectra were measured up to fields  $B_x \leq 10$  G with an increase in the amplitude of the oscillating field  $B_1 = 0.1 - 1$  G, since the absorption intensity dropped sharply with increasing field  $B_x$ . Such absorption spectra are shown in Figure 36. For both points on the sample, the absorption spectra fall off identically with increasing field  $B_x$  and the absorption peaks are not split.

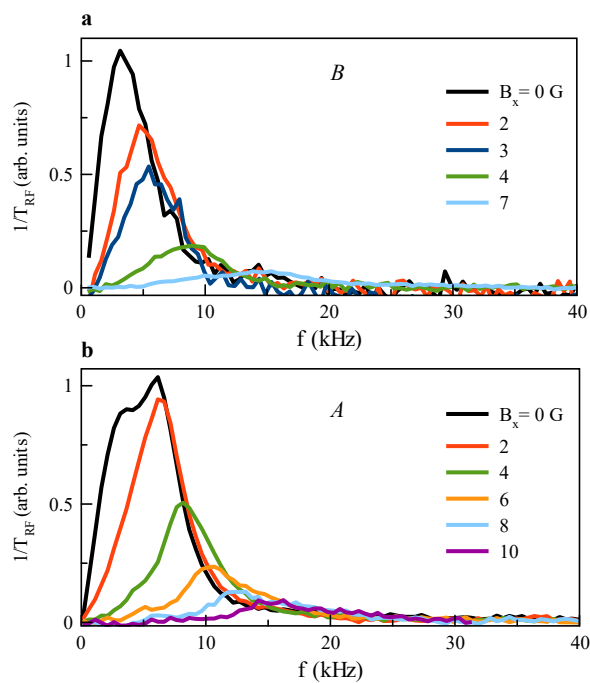


Figure 36 – Absorption spectra for sample S2, measured in longitudinal experimental geometry, when  $B_x \parallel B_x^1$ , for two points on the sample: B (a) и A (b).

In the transverse configuration, the absorption spectra for two points on the sample were measured up to fields  $B_z \leq 100$  G. The appearance of the absorption spectra is very similar to the classical NMR spectra: the absorption peak in zero field with increasing field  $B_z$  shifts to the high-frequency range and in fields  $B_z > 10$  G splits into three absorption peaks, which correspond to transitions between Zeeman energy levels for three GaAs isotopes:  $^{75}\text{As}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  и  $^{71}\text{Ga}$  (Figure 37. For clarity, the spectra are shown in fields up to 30 G).

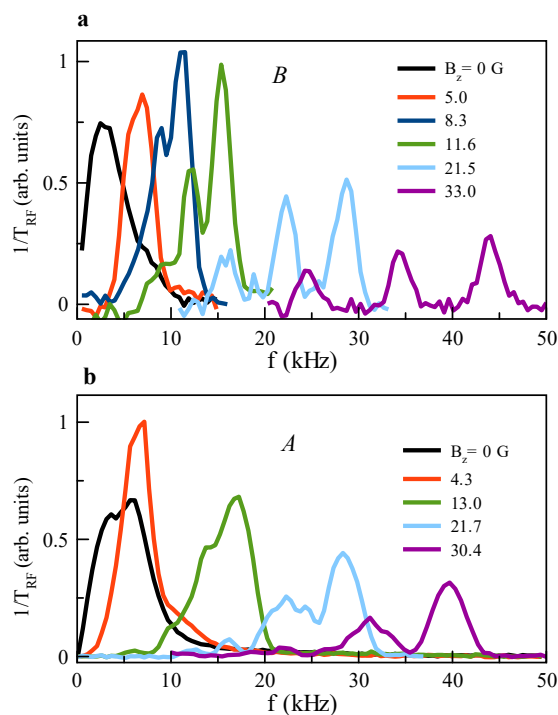


Figure 37 – Absorption spectra for sample S2, measured in transverse experimental geometry when  $B_Z \perp B_x^1$ , for two points on the sample: B (a) и A (b).

If you look at Figure 37, you can see that the absorption spectra for point B, already in the field  $B_Z = 20$  G go out to three separate narrow Zeeman peaks. In the spectra for point A, individual peaks begin to appear only in the field  $B_Z = 30$  G, while they are broadened. This difference is due to the fact that at point A the quadrupole interaction is greater, and the broadening of the Zeeman lines is the appearance of quadrupole satellites. To be convinced of this, and also to estimate the magnitude of the quadrupole interaction, for points A and B, all the experimentally observed absorption peaks were fitted by the Lorentz functions. The positions of the Lorentzian maxima were taken from the fits and plotted as a function of the external magnetic field. Fit examples for field  $B_Z = 35$  G (point A) and for field  $B_Z = 100$  G (point B) are shown in Figure 38.

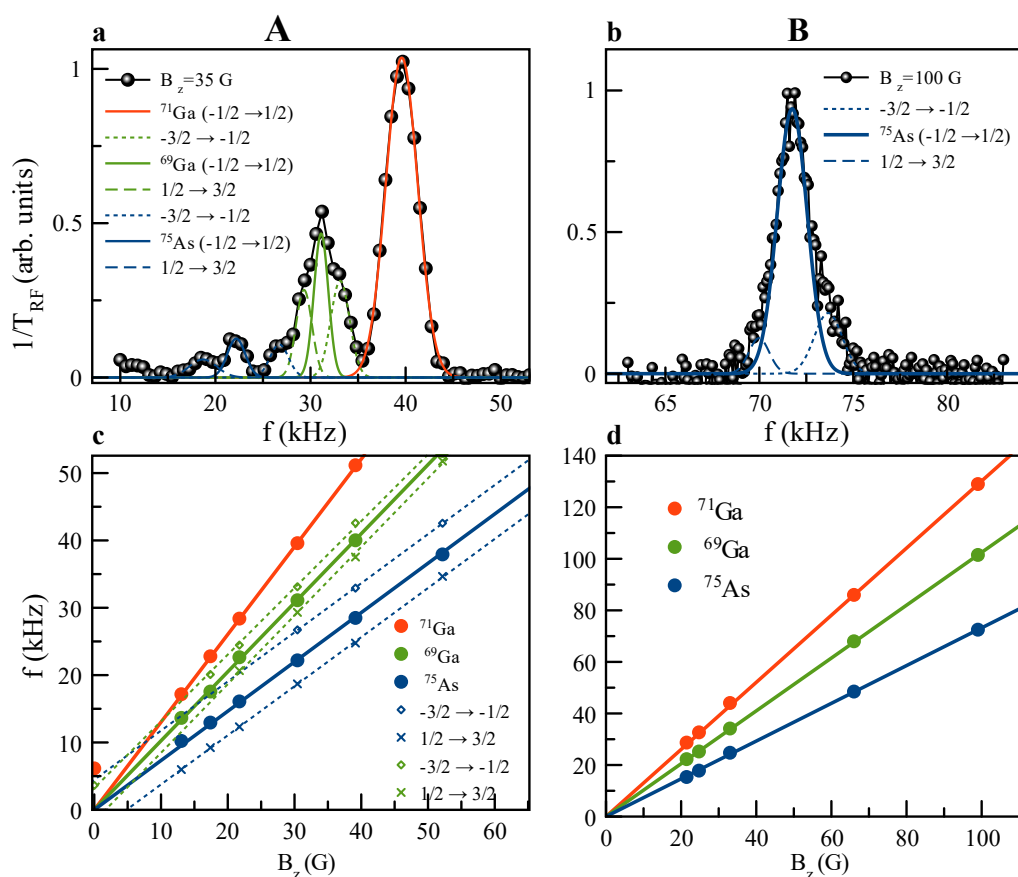


Figure 38 – (a) Absorption spectrum measured at point A in field  $B_z = 35$  G (black circles). The absorption peaks corresponding to the central transitions  $-1/2 \rightarrow 1/2$  for  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes are fitted by the Lorentz functions (red, green, and blue solid lines). Satellite absorption peaks for  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes are also fitted by Lorentz functions (green and blue dashed lines); (b) Absorption spectrum of  $^{75}\text{As}$  isotope, measured at point B in static field  $B_z = 100$  G (black circles). The absorption peak corresponding to the central transition  $-1/2 \rightarrow 1/2$ , is also fitted by Lorentz function (blue solid line). Satellite peaks are also fitted by Lorentz functions (blue dashed lines); (c) Frequency positions of absorption peaks depending on the value of the static magnetic field  $B_z$  for the point A, corresponding to central transitions  $-1/2 \rightarrow 1/2$  for  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes (red, green and blue circles respectively). Red, green, and blue solid lines through the circles correspond to the calculated gyromagnetic ratios for  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes. Green and blue crosses and hollow circles correspond to the frequency positions of the satellite peaks for  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$ ; (d) Frequency positions of absorption peaks depending on the value of the static magnetic field  $B_z$  for the point B, corresponding to central transitions  $-1/2 \rightarrow 1/2$  for  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes (red, green and blue circles respectively). Red, green and blue solid lines passing through the circles correspond to the calculated gyromagnetic ratios for  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes.

During the fitting of the absorption spectra for point A, the appearance of quadrupole satellites in the Zeeman lines was clearly seen with increasing field  $B_z$ . In this case, satellites were observed only

for the absorption peaks of  $^{75}\text{As}$  and  $^{69}\text{Ga}$  isotopes. For  $^{71}\text{Ga}$  isotope they were not observed due to the smallness of the quadrupole constant of  $^{71}\text{Ga}$  isotope. A clear course of the satellite absorption peaks parallel to the Zeeman peaks is shown in Figure 38 (c). As it was said in Section 1. 2. 4., the quadrupole interaction splits and shifts the Zeeman energy levels. So, central transition ( $-\frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$ ) in the presence of quadrupole interactions, almost does not change in frequency, and transitions  $-\frac{3}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$  and  $\frac{1}{2} \rightarrow \frac{3}{2}$  are shifted by  $\pm \omega_Q'$  respectively (see Figure 4) and form the quadrupole satellite lines.

When fitting the absorption spectra for point B, with increasing field  $B_z$  the absorption peak was split into three Zeeman peaks without satellites. To check whether there is a quadrupole interaction at a given point on the sample, the absorption peak of the isotope with the largest quadrupole interaction constant,  $^{75}\text{As}$  isotope, at external magnetic field  $B_z = 100$  G (Figure 38 (b)). Separate satellite peaks, as at point A, were not obtained. However, the absorption peak had a slight broadening, which can be attributed to the presence of a weak quadrupole interaction. Thus, the peak can be fitted with three Lorentz functions corresponding to the central transition  $-\frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$  (solid blue line in Figure 38 (c)) and nascent satellites, which correspond to transitions  $-\frac{3}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$  and  $\frac{1}{2} \rightarrow \frac{3}{2}$  (the dashed blue lines in the Figure 38 (c)).

The frequency shift of the satellites can be used to estimate the magnitude of the quadrupole interaction at points A and B, if we assume that the source of the quadrupole interaction is uniaxial deformation. So, with this type of deformation, the frequency shift  $\Delta f$  is related to the component of the elastic strain tensor  $\varepsilon_b$  through the equation (the remaining components of the elastic strain tensor in this case are equal to zero):

$$\varepsilon_b = \frac{\Delta f 2h}{eQ_i S_{11}^i}, \quad (4.1)$$

where  $S_{11}^i$  – 4<sup>th</sup> rank gradient-elastic tensor component for  $i$ -th isotope (the values of this tensor component for GaAs isotopes are given in Table 3),  $Q_i$  – quadrupole constant for  $i$ -th isotope (the values of these constants for GaAs isotopes are given in Table 2).

Thus, for point B, in the external magnetic field  $B_z = 35$  G (Figure 38 (a)) for  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes in the absorption spectrum the frequency shifts are  $\Delta f = 2$  kHz and 4 kHz respectively. Substituting them into eq. (4.1), as well as  $S_{11}^i$  and  $Q_i$  for the corresponding isotopes, it turns out that the component of elastic deformation responsible for uniaxial pressure is equal to  $\varepsilon_b = 4.3 * 10^{-5}$  (such a deformation is considered very insignificant, since the samples in which the influence of quadrupole effects on various properties of the NSS, for example, quantum dots, is studied, have splitting ten times more:  $\Delta f \sim 30$  kHz and, accordingly, ten times stronger deformation, which can be easily identified by

the nuclear quadrupole resonance method , or by the ODNMR method in strong external magnetic fields). As mentioned above, the presence of a quadrupole interaction in a bulk GaAs sample in this case is possible due to the differences in the coefficients of thermal expansion (CTE) of the copper holder and GaAs. So, for sapphire CTE is equal to  $4.85 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ , and for GaAs CTE is equal to  $4.5 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  at the temperature 300 K. If we assume that the CTE for these crystals does not change with a decrease in temperature from 300 K to 20 K, then the relative change in the lengths of the holder and the sample upon cooling:  $\Delta L = \frac{\Delta l(\text{sapphire})}{l} - \frac{\Delta l(\text{GaAs})}{l} = (300 - 20) * \{CTE(\text{sapphire}) - CTE(\text{GaAs})\} \approx 10^{-4}$ . Such a change in length upon cooling is comparable to the value of the elastic strain tensor component  $\varepsilon_b = 4.3 * 10^{-5}$ , obtained from experiments on absorption spectra.

For point B on the sample, the frequency shift for the  $^{75}\text{As}$  isotope is two times less than for point A and is  $\Delta f = 2 \text{ kHz}$  (Figure 38 (b)). This shear corresponds to the two times smaller component of the elastic strain tensor  $\varepsilon_b = 2.1 * 10^{-5}$ . However, such a value is permissible, since it lies within the estimation of the change in the lengths of the holder and the sample upon cooling to 20 K.

Measurements of absorption spectra and the assumption about the type of quadrupole interaction in sample S2 were the first important step towards the creation of nuclear spin warm up spectroscopy, in which four experimental geometries were subsequently used, as well as a specially created model for analyzing the obtained absorption spectra to accurately determine the type and magnitude quadrupole interaction in the test sample. The approximate analysis described in this section and the absorption spectra presented indicate the effectiveness of the technique of warming up an optically cooled NSS with an oscillating magnetic field in zero and weak static magnetic fields for determining even insignificant (an order of magnitude less than usually studied) values of quadrupole interactions in a sample.

The development of the nuclear spin warm up spectroscopy method will be presented in the next section for the example of sample S1.



### 4.3 Analysis of absorption spectra for sample S1

The complete technique of nuclear spin warm up spectroscopy assumes the use of absorption spectra in four experimental configurations for further theoretical analysis (see the schematic representation of the experiment geometries in Figure 26). Each absorption spectrum (as in the previous section) was obtained according to the four-stage experimental protocol described in Section 2.1. Below, we present the experimental absorption spectra in four geometries using the sample S1 as an example, their theoretical analysis and, as a result, the types and magnitudes of contributions to the quadrupole interaction. Thus, the sample S1 will demonstrate the complete and operational at the time of writing the thesis technique of nuclear spin warm up spectroscopy. It is worth noting that it has been developed and debugged from scratch during the entire period of study in postgraduate studies.

#### 4.3.1 Absorption spectra at zero magnetic field

Based on the experience gained from the study of sample S2, absorption spectra in zero magnetic field were also measured for sample S1 at various points on the sample (point 1 - point 4, Figure 39). However, in contrast to sample S2, regardless of the point on the sample, the absorption spectra always had two peaks: at frequencies  $f_1 = (4-7)$  kHz and  $f_2 = (12-22)$  kHz. The observed absorption peaks in zero magnetic field are associated with the quadrupole interaction in the sample. Since,  $f_1$  peak is associated with the quadrupole interaction of the nuclei of the  $^{71}\text{Ga}$  and  $^{69}\text{Ga}$  isotopes, since they have similar quadrupole constants, and  $f_2$  peak is associated with the  $^{75}\text{As}$  isotope. The evolution of these absorption peaks with an increase in the external static magnetic field for point 2 in four experimental configurations will be presented in the next section.

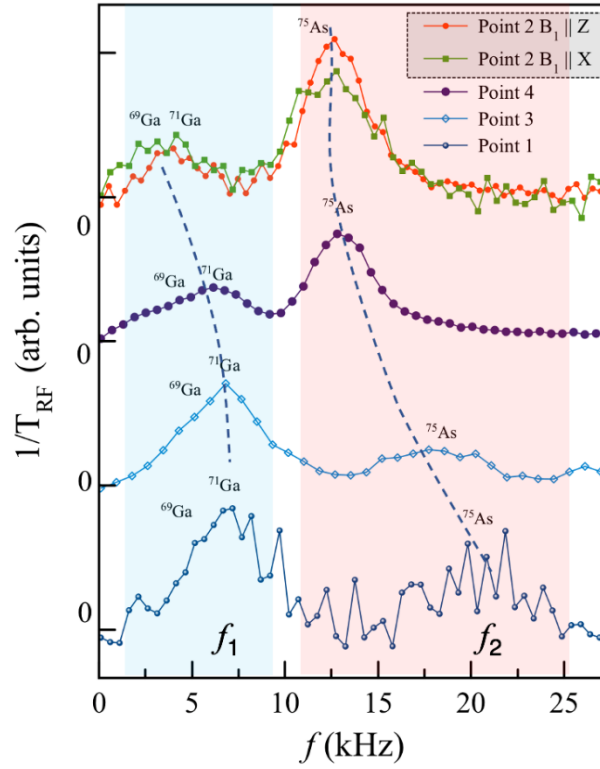


Figure 39 – Absorption spectra in zero magnetic field for sample S1 at four different points on the sample, obtained using a four-stage experimental protocol. The spectra contain two absorption peaks: at frequencies  $f_1 = (4-7)$  kHz and  $f_2 = (12-22)$  kHz. The dependences of the frequency position of each peak on a point on the sample are shown by dashed lines. For comparison with the absorption spectra from other samples, the spectrum for sample S1 at point 2 is shown in Figure 34 in red.

#### 4.3.2 Absorption spectra in four experimental configurations. General form

The absorption spectra for sample S1 were obtained in two longitudinal and two transverse experimental geometries. Spectra in longitudinal geometries (when the external static field was parallel to the oscillating field:  $B_x || B_x^1$  and  $B_z || B_z^1$ ) are shown in Figure 40 in the form of waterfalls. The spectra were measured up to the values of static magnetic field  $B_{x,z} < 18$  G, since with an increase in the static field the absorption rapidly decreased. This is clearly seen in Fig. 40: for the spectra in  $B_{x,z} \sim 10$  G the integrated absorption is very small compared to the rest of the spectra. Further, the absorption spectra will be normalized to the integral absorption so that all observed peaks are clearly visible.

The evolution of the two absorption peaks with increasing static magnetic field is different for the two longitudinal configurations. In the case of  $B_x || B_x^1$  the two peaks first move together to the high-frequency region and broaden, and then, in the field  $B_x = 3.9$  G the high-frequency peak continues to move towards high frequencies, and the low-frequency peak, on the contrary, begins to shift to low frequencies (Figure 40 (a)). In the configuration, when  $B_Z || B_Z^1$ , a different evolution is observed: first, two peaks shift to the high-frequency part, and then, starting from the field  $B_Z = 6.1$  G, they merge into one peak, which continues to move to the high-frequency region (Figure 40 (b)). This difference can be caused by the fact that an oscillating magnetic field applied in different directions induces different types of transitions between the quadrupole energy levels of nuclear spins.

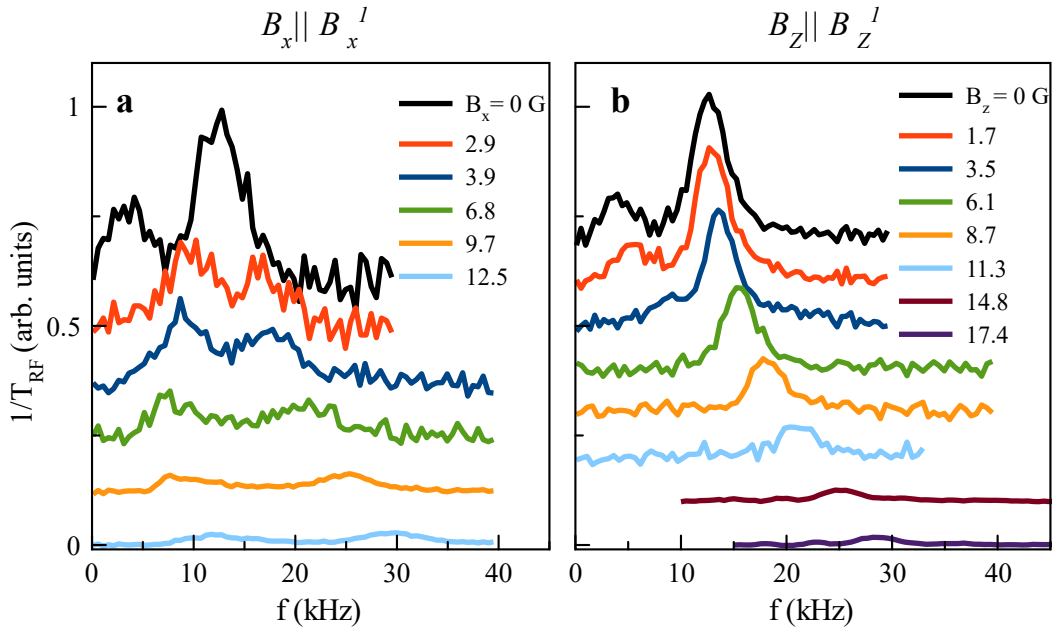


Figure 40 – Unnormalized absorption spectra for sample S1 measured in two longitudinal experimental configurations: (a)  $B_x || B_x^1$  and (b)  $B_Z || B_Z^1$ .

Absorption spectra in two transverse configurations (when  $B_Z \perp B_x^1$  and  $B_x \perp B_Z^1$ ) were measured up to static magnetic fields  $B_{Z,x} < 90$  G and are shown as waterfalls in Figure 41. The behavior of the two absorption peaks with increasing magnetic field for two transverse configurations has a general tendency: with increasing field, the absorption peaks emerge into three peaks corresponding to transitions between the Zeeman energy levels of the three GaAs isotopes:  $^{75}\text{As}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{71}\text{Ga}$ , which corresponds to classical NMR experiments. However, in geometry  $B_Z \perp B_x^1$ , already in fields  $B_Z > 10$  G, three narrow Zeeman peaks begin to appear. In this case, in the  $B_x \perp B_Z^1$  geometry, the splitting into Zeeman peaks begins much later (approximately in fields  $B_x > 30$  G), and the absorption peaks are rather broad. As will be shown below, this broadening is associated with the appearance of quadrupole satellites.

The evolution of absorption peaks in a bulk  $n$ -GaAs sample, which has uncontrolled deformation causing quadrupole interactions, is different in each of the four experimental geometries. This suggests that each of the geometries carries certain information and is important for accurately identifying the type and magnitude of the quadrupole interactions in the sample. This section provides only a general view of the absorption spectra.

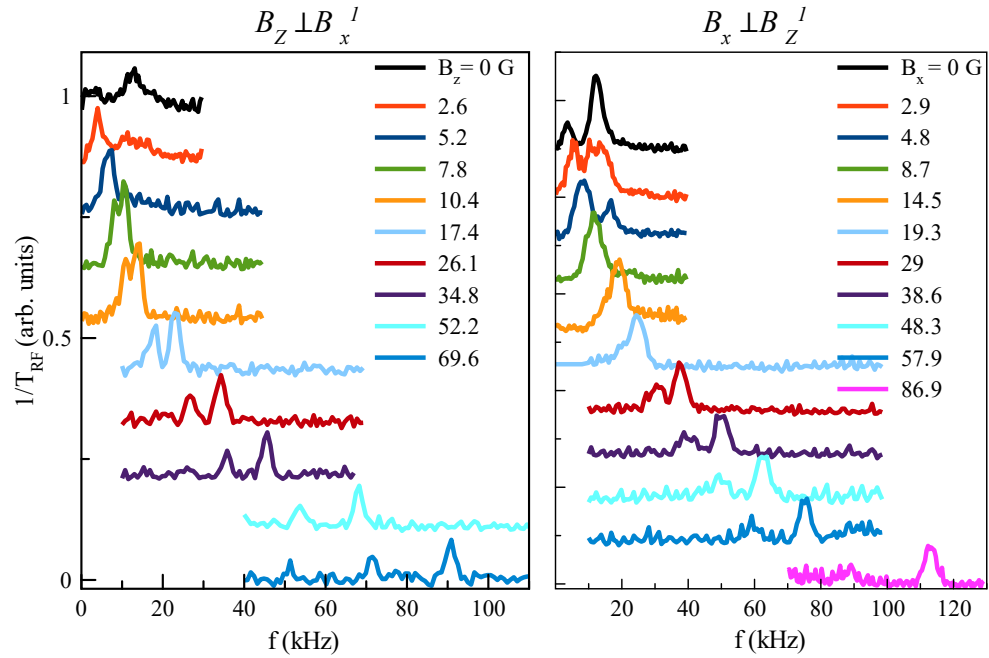


Figure 41 – Unnormalized absorption spectra for sample S1 measured in two transverse experimental configurations: (a)  $B_Z \perp B_x^1$  and (b)  $B_x \perp B_Z^1$ .

### 4.3.3 Theoretical analysis of absorption spectra in external magnetic fields for sample S1

The behavior of the absorption peaks in an external magnetic field (the evolution of the frequency positions of the absorption peaks with increasing field) is determined by the quadrupole and Zeeman energies of the nuclear spins of three GaAs isotopes. For each of three isotopes, it is expected to see four types of transitions between nuclear energy levels for transverse geometries (dark green and light blue arrows in Figure 42 (a), (b), respectively), and two types of transitions for longitudinal geometries (light green and blue arrows in Figure 42 (a), (b), respectively).

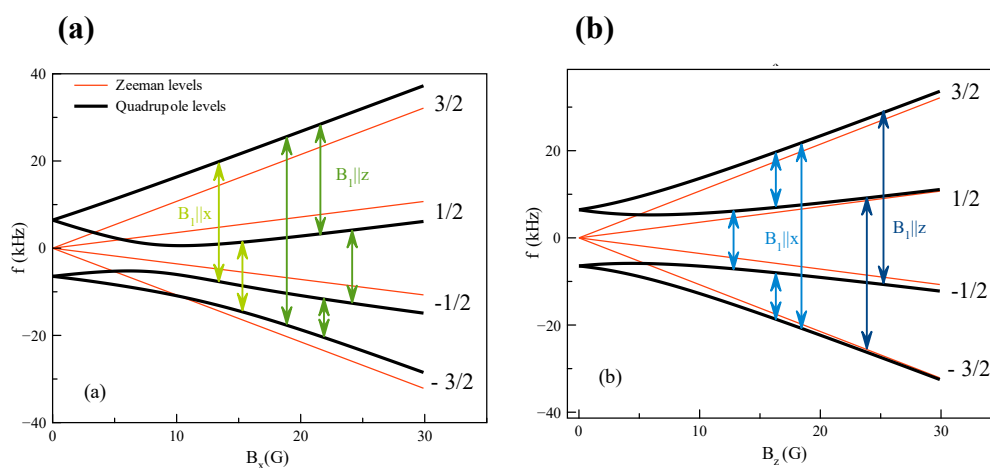


Figure 42 – Zeeman (red lines) and quadrupole + Zeeman (black lines) energy levels of nuclear spins of the  $^{75}\text{As}$  isotope in external fields (a)  $B_x$  and (b)  $B_z$ . The arrows show the allowed types of transitions for four experimental geometries: four types of transitions for each transverse geometry (dark green and light blue arrows) and two types of transitions for each longitudinal geometry (light green and blue arrows).

At the same time, it can be seen from Figure 42 (a) that satellites are expected to be seen only in transverse geometry, when  $B_x \perp B_z^1$  (with increasing field, the red quadrupole lines do not tend to black Zeeman lines, but run parallel to them, forming quadrupole satellites). In experiments, this manifests itself first as a broadening of the absorption peak and then as a splitting into Zeeman peaks accompanied by satellites. Examples of absorption spectra in this geometry for three values of external static magnetic fields  $B_x = 8.7, 19.3$  and  $29$  G are shown in Figure 43 by blue dots. The spectra were fitted with Lorentz functions that describe all observed absorption peaks (green lines in Figure 43). Similar fits were made for the entire set of experimental absorption spectra. The frequency positions of absorption peaks were

taken from these fits. This will be necessary to further illustrate the agreement between theory and experiment (see colormap).

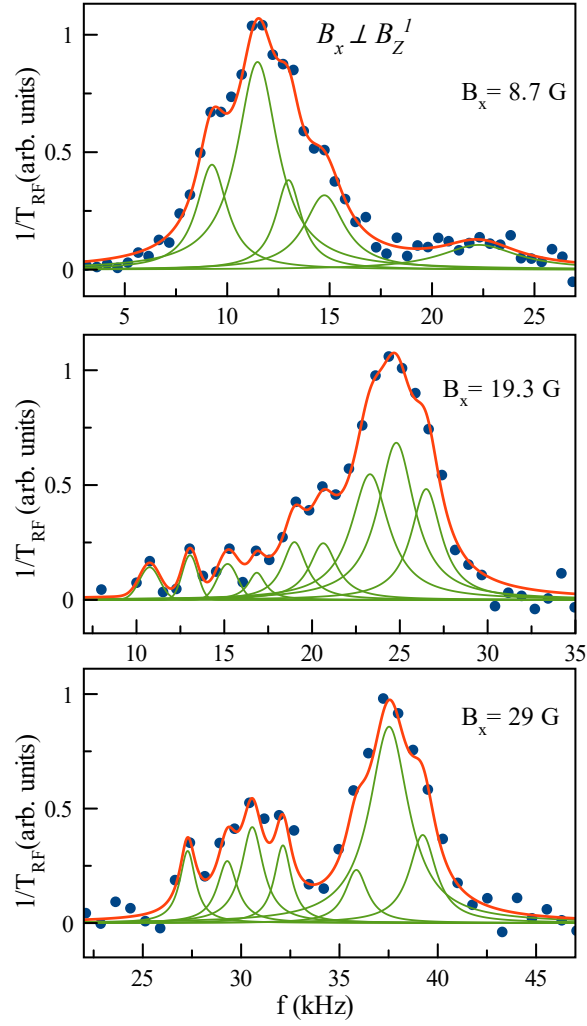


Figure 43 – Examples of absorption spectra in transverse geometry  $B_x \perp B_Z^I$  for  $B_x = 8.7, 19.3$  and  $29$  G (blue dots). Lorentz fit of the observed absorption peaks (green lines). The red lines show the total fitting functions.

In order to describe the obtained absorption spectra, we used the quantum-mechanical description of the quadrupole energy of the nuclear spin in the presence of an external static magnetic field, as well as an oscillating field as a perturbation.

Quadrupole interaction of the nuclear spin  $I$ , which has a quadrupole moment  $eQ^i$ , where  $i$  – isotope number, for the crystal axes  $Z \parallel 001, X \parallel 100, Y \parallel 010$ , described by the Hamiltonian:

$$\hat{H}_Q = \frac{eQ^i}{6I(2I-1)} \sum_{j,k} V_{jk} \left\{ \frac{3}{2} (\hat{I}_j \hat{I}_k + \hat{I}_k \hat{I}_j) - \delta_{jk} \hat{I}^2 \right\}, \quad (4.2)$$

where  $V_{jk} = \sum_{lm} S_{jklm} \varepsilon_{lm} + \sum_i R_{ijk} F_i$  – the EFG tensor at the location of the nucleus.

It is known that in the absence of external influences on a crystal of cubic symmetry, all components of the EFG tensor are equal to zero:  $V_{jk} = 0$ . EFG can be caused by some deformation of the lattice, as well as by a uniform internal electric field. The purpose of further theoretical analysis is to find out the cause of the EFG.

Since the sample under study is a thin plate (the Z axis is the sample's growth axis), it can be assumed that the shear deformation in (x, z) and (y, z) planes will be zero. If it is assumed that there is an internal electric field, then it will most likely be caused by a doping gradient or surface charges and directed along the Z axis. Based on these assumptions, we write the Hamiltonian of the quadrupole interaction in the form:

$$\hat{H}_{Qi} = \frac{E_{QZ}^i}{2} \left( \hat{I}_Z^2 - \frac{I(I+1)}{3} \right) + \frac{E_{QR}^i}{4\sqrt{3}} \left( \hat{I}_+^2 + \hat{I}_-^2 \right) + i \frac{E_{QI}^i}{4\sqrt{3}} \left( \hat{I}_+^2 - \hat{I}_-^2 \right). \quad (4.3)$$

This Hamiltonian is characterized by nine energy parameters, three for each isotope:  $E_{QZ}^i$ ,  $E_{QR}^i$  and  $E_{QI}^i$ , where  $i$  – isotope number.

$E_{QZ}^i$  parameter is responsible for the presence of uniaxial deformation in the sample along the Z axis:

$$E_{QZ}^i = \frac{9eQ^i S_{11}^i}{4I(I-1)} \left( \varepsilon_{zz} - \frac{\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}}{3} \right), \quad (4.4)$$

where  $S_{11}^i$  – gradient-elastic tensor component for  $i$ -th isotope,  $\varepsilon_{zz}$ ,  $\varepsilon_{yy}$  and  $\varepsilon_{xx}$  – diagonal components of the elastic strain tensor.

$E_{QR}^i$  is responsible for uniaxial deformation along the x and y axes:

$$E_{QR}^i = \frac{3\sqrt{3}eQ^i S_{11}^i}{4I(2I-1)} (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}). \quad (4.5)$$

The last parameter  $E_{QI}^i$  is simultaneously responsible for both the shear deformation in the (x, y) plane and the internal electric field along the growth axis:

$$E_{QI}^i = \frac{\sqrt{3}eQ^i S_{44}^i}{2I(2I-1)} (\varepsilon_{xy} + \varepsilon_{yx}) + \frac{\sqrt{3}eQ^i R_{14}^i}{I(2I-1)} F, \quad (4.6)$$

where  $S_{44}^i$  – gradient-elastic tensor component for  $i$ -th isotope,  $\varepsilon_{xy}$  – off-diagonal elastic tensor component,  $R_{14}^i$  – piezoelectric tensor component for  $i$ -th isotope.

The types of all mentioned tensors are described in Section 1. 2. 6., and the values of the nonzero components for three GaAs isotopes are given in Table 3. As noted in Chapter 1, the  $R_{14}^i$  values were taken from [24] and recalculated taking into account the new quadrupole constants from [22].

It can be assumed that the stress applied to the sample consists of the compressive pressure  $p_1$ , applied in the plane (x, y) (x || [110], y || [1 $\bar{1}$ 0]) at some angle  $\zeta$  relative to x-axes, and “tensile” pressure  $p_2$  in the orthogonal direction. Then all nonzero components of the elastic strain tensor  $\varepsilon_{lm}$  in the case of a crystal of cubic symmetry can be expressed in terms of these three parameters using the stiffness tensor  $C_{iklm}$ :

$$\varepsilon_{xx} = \frac{(C_{11}+2C_{12})(p_1 \cos^2 \zeta + p_2 \sin^2 \zeta) - C_{12}(p_1+p_2)}{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}, \quad (4.7)$$

$$\varepsilon_{yy} = \frac{(C_{11}+2C_{12})(p_1 \sin^2 \zeta + p_2 \cos^2 \zeta) - C_{12}(p_1+p_2)}{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}, \quad (4.8)$$

$$\varepsilon_{zz} = -\frac{C_{12}(p_1+p_2)}{(C_{11}-C_{12})(C_{11}+2C_{12})}, \quad (4.9)$$

$$\varepsilon_{xy} = \varepsilon_{yx} = (p_1 - p_2) \frac{\cos \zeta \sin \zeta}{C_{44}}. \quad (4.10)$$

The values of the nonzero components of the stiffness tensor  $C_{iklm}$  for a crystal of cubic symmetry are given in Table 3.

The expressions for the parameters  $E_{QZ}^i$ ,  $E_{QR}^i$  and  $E_{QI}^i$  can be rewritten in terms of the pressures  $p_1$  and  $p_2$  and of the angle  $\zeta$ , at which these pressures are directed in the (x, y) plane:

$$E_{QZ}^i = -\frac{3eQ^i S_{11}^i}{4I(2I-1)C_{11}-C_{12}} \frac{1}{C_{11}-C_{12}} (p_1 + p_2), \quad (4.11)$$

$$E_{QR}^i = \frac{3\sqrt{3}eQ^i S_{11}^i \cos(2\zeta)}{4I(2I-1)C_{11}-C_{12}} (p_1 - p_2), \quad (4.12)$$

$$E_{QI}^i = \frac{\sqrt{3}eQ^i S_{44}^i \sin(2\zeta)}{2I(2I-1)C_{44}} (p_1 - p_2) + \frac{\sqrt{3}eQR_{14}^i}{I(2I-1)} F. \quad (4.13)$$

The total energy of the NSS in an external magnetic field is given by the sum of the quadrupole and Zeeman Hamiltonians for each isotope:

$$\hat{H}_i = \hat{H}_{Qi} + \gamma_i h(\hat{I} \cdot B). \quad (4.14)$$



The energy levels of each isotope are determined by the eigenvalues of the Hamiltonian  $\hat{H}_i$ . The eigenfunctions  $|\Psi_m\rangle$  of Hamiltonian  $\hat{H}_i$  are superpositions of states with projections of angular momenta  $|\pm 1/2\rangle$ ,  $|\pm 3/2\rangle$ , which depend on the relative orientations of the pressure direction and crystallographic axes. They can be found using the numerical diagonalization of the Hamiltonian  $\hat{H}_i$ . An oscillating magnetic field induces transitions between these states if the frequency of the oscillating field coincides with the energy difference between the energy levels of nuclear spins. The probability of a transition between the energy levels  $E_k$  and  $E_l$  for  $i$ -th isotope  $P_{kl}^i$  is proportional to the square of the matrix element of the Hamiltonian  $\hat{H}_1$ , which describes the interaction of the NSS with an oscillating magnetic field:  $P_{kl}^i \sim \langle \Psi_k | \hat{H}_1 | \Psi_l \rangle^2$ . Then, warm up rate of the NSS  $\frac{1}{T_{RF}}$  can be written in terms of the transition probability  $P_{kl}^i$ :

$$\frac{1}{T_{RF}} = \frac{A^i P_{kl}^i |E_k^i - E_l^i|^2}{\sum_i A^i \sum_{j=1}^4 |E_j^i|^2}, \quad (4.15)$$

where  $A^i$  – isotopic fraction ( $A(^{71}\text{Ga}) = 0.2$ ,  $A(^{69}\text{Ga}) = 0.3$  and  $A(^{75}\text{As}) = 0.5$ ).

This calculation of the eigenvalues and eigenfunctions of the nuclear spin makes it possible to describe the entire ensemble of 35 experimental absorption spectra. For this, the frequencies of all possible transitions and their probabilities for three isotopes and four experimental geometries were calculated from the obtained eigenvalues and eigenfunctions. Further, eq. (4.15) for each of the 35 experimental cases was convolved with the empirical Gaussian function with half-width at half-height  $\delta f = 1.5$  kHz. To fit the calculated absorption spectra to the experimental ones, we used the values of the energy parameters  $E_{QZ}^i$ ,  $E_{QR}^i$  and  $E_{QI}^i$ . Fitting was performed using the least squares method: the values of the fitting parameters changed from iteration to iteration until the theory coincides with experiment. Experimental (colored points) and theoretical (colored lines) curves are shown in Figure 44 for the entire ensemble of spectra. Each experimental and theoretical spectrum was normalized to the integral absorption, so that in high fields in longitudinal geometries absorption peaks were better visible.

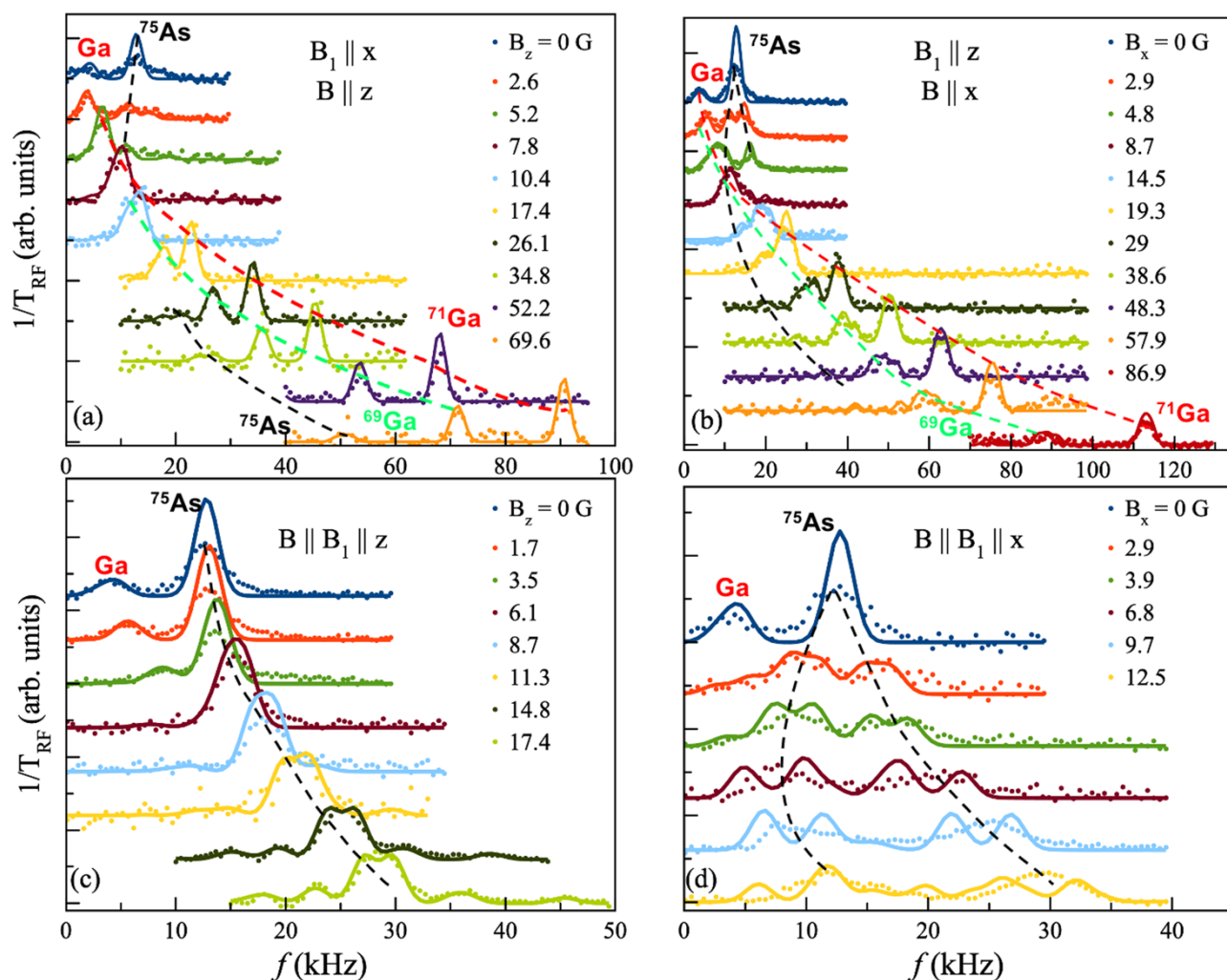


Figure 44 – Experimental (colored dots) and theoretical (colored lines) absorption spectra for two transverse (a), (b) and two longitudinal (c), (d) configurations. All spectra are normalized to integral absorption. Black, red and green dashed lines show the evolution of absorption peaks for  $^{75}\text{As}$ ,  $^{71}\text{Ga}$  and  $^{69}\text{Ga}$  isotopes respectively.

As a variant of representing the theoretically calculated spectra, three-dimensional figures (colormaps, Figure 45) were constructed for each of the four experimental configurations, in which the intensity of the calculated absorption spectra is shown in color, and the positions of the experimental peaks are represented by white circles. In this case, the size of the circles is determined by the integral absorption of each experimental peak. So, colormaps clearly show the agreement between theory and experiment. Experimentally observed satellites in transverse geometry  $B_x \perp B_z^1$  (see examples of fits in Figure 43) are well described by theory (Figure 45 (b)). Comparison of the integrated absorption intensities of the calculated (Figure 45 (c), (f) lines) and experimental (Figure 45 (c), (f) circles) absorption spectra show good agreement.

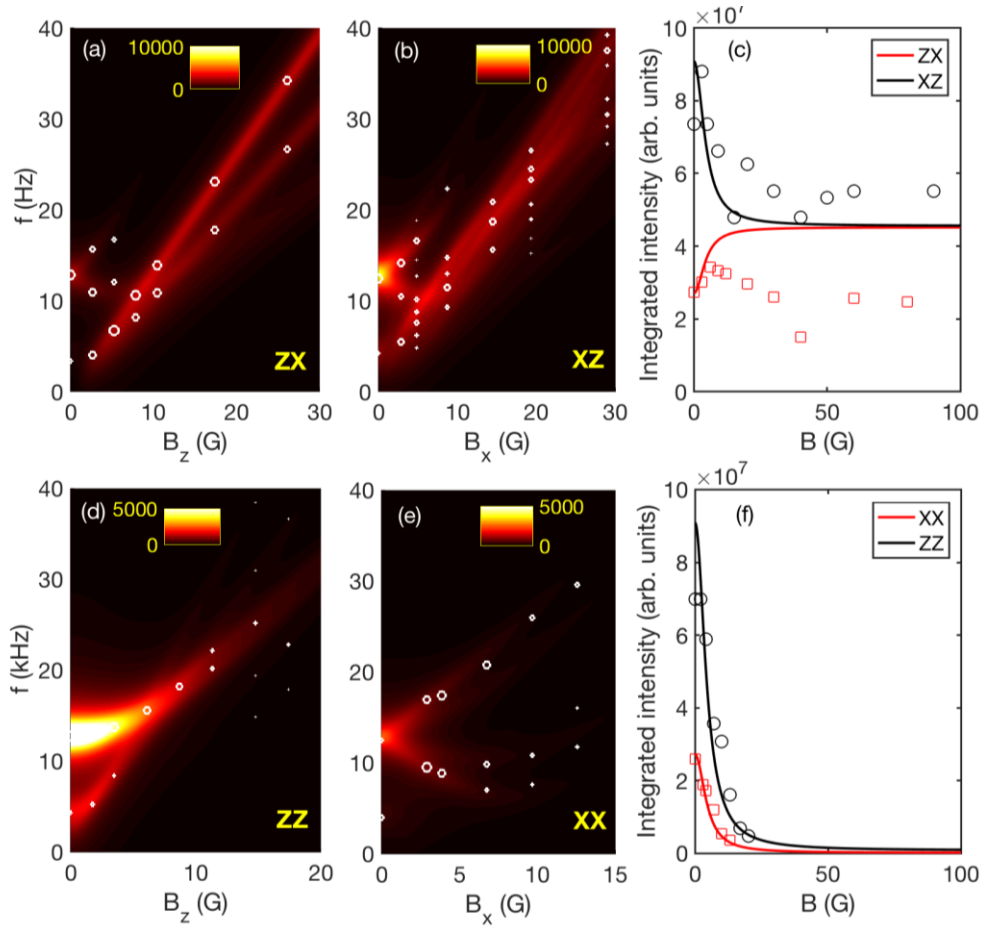


Figure 45 – Three-dimensional representation (colormap) of the calculated absorption spectra in two transverse: (a)  $B_z \perp B_x^1$  and (b)  $B_x \perp B_z^1$  and two longitudinal: (d)  $B_z \parallel B_z^1$  and (e)  $B_x \parallel B_x^1$  geometries. The color shows the calculated absorption intensity. White circles indicate the frequency positions of the experimental absorption peaks obtained from the fitting of the spectra by the Lorentz functions. The sizes of the circles are proportional to the integrated absorption intensity of each peak observed in the experiment. To the right of the colormaps are plots of the integral absorption versus each experimental (red and black symbols) and calculated (red and black lines) spectrum in four geometries: (c) two transverse and (f) two longitudinal.

The best fit, which is shown in Figures 44 and 45, corresponds to the fact that all energy parameters  $E_{QZ}^i$ ,  $E_{QR}^i$  and  $E_{QI}^i$ , which are given by equations (4.11) - (4.13), are not equal to zero. This means that the sources of quadrupole interactions in the sample are stress / compression (which are determined by the parameters  $E_{QZ}^i$  and  $E_{QR}^i$ ) and shear strain or internal electric field in the sample (these two contributions are responsible for one parameter  $E_{QI}^i$ ). As mentioned above (in particular, when describing the quadrupole interactions in sample S1), the source of mechanical deformations can be the difference between the thermal expansion coefficients of the copper holder and GaAs upon cooling to

$T = 20 \text{ K}$ . Also, the glue can cause some uncontrolled compression of the sample. The values of the resulting energy parameters are shown in Table 5.

Table 5 – Values of quadrupole energy parameters for three GaAs isotopes obtained by fitting the calculated absorption spectra to the experimental ones.

GaAs isotope Energy parameter (kHz)	$^{71}\text{Ga}$	$^{69}\text{Ga}$	$^{75}\text{As}$
$E_{QZ}/h$	0.45	0.73	-1.5
$E_{QR}/h$	-2	-3.3	6.5
$E_{QI}/h$	-2	-3.1	-11

Taking into account the known components of the quadrupole tensors for the three GaAs isotopes given in Table 3, it is possible to obtain the pressure values  $p_1$  and  $p_2$  from the equations for the energy parameters (4.11) - (4.13), angle value  $\zeta$  and build in electric field  $F$ :  $p_1 = -4 \text{ MP}$ ,  $p_2 = 2 \text{ MP}$ ,  $\zeta = 0.19$  and  $F = 4 \text{ kV/cm}$ . The presence of an electric field near the sample surface is possible due to the Fermi level pinning to surface states in the center of the GaAs band gap [55]; however, such a field can ionize donors, thereby suppressing dynamic nuclear polarization through electrons localized on donors [56, 57]. To find out where the electric field could come from near the surface of the sample, the sample was analyzed using scanning electron microscopy. We used the method of recording the current passing through the sample, which was induced by an electron beam (EBIC - electron beam induced current). The measurements were made at the Ioffe Physicotechnical Institute by collaborators A.I. Likhachev and A.V. Nashchekin). Analysis showed that sample S1 consists of a  $p$ -GaAs substrate located at a distance of  $77 \mu\text{m}$  from the surface of the  $n$ -GaAs sample. An increase in current (Figure 46) corresponds to an increase in the electric field in the space charge region (SCR) at the  $p$ - $n$  junction. So, the field created by the SCR is estimated to be  $F_{p-n} = 25 \text{ kV/cm}$ . However, near the sample surface, from which the PL signal was collected, the current does not change, which suggests that even if there is a certain field near the surface, it is less than:  $F < 1 \text{ kV/cm}$ . But such a field value is equivalent to the fact that this field does not exist:  $F = 0$ . Therefore, in order not to violate the quality of the fit (not to change the values of the energy parameters given in Table 5), it must be assumed that the  $S_{44}$  gradient-elastic tensor component for the arsenic isotope is different from that given in Table 4. Otherwise, simply changing the parameters  $p_1$ ,  $p_2$  and  $\zeta$ , it is impossible to obtain the same values of  $E_{QZ}^i$ ,  $E_{QR}^i$  and  $E_{QI}^i$ , as in Table

5. So,  $S_{44}({}^{75}\text{As}) = 17 \pm 3 \text{ V/m}^2$ , which is almost two times less than the value  $S_{44}$  from Table 5, which was obtained in [23]. In this case, the quadrupole interactions in the sample at  $F = 0$  are determined only by deformation, therefore, the pressures become higher:  $p_1 = 10 \text{ MP}$ ,  $p_2 = -11 \text{ MP}$  and  $\zeta = -0.64$ .

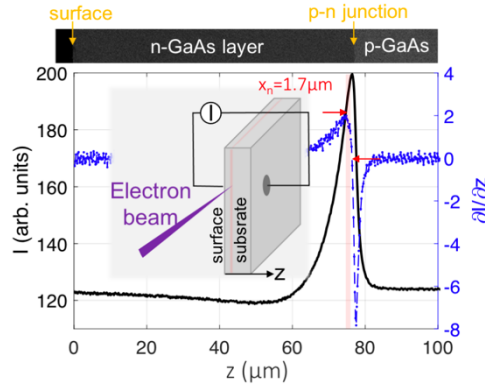


Figure 46 – The current induced by the electron beam (black line) and its derivative (blue line) depending on the position of the beam on the sample cleavage (sample S1). The pink vertical bar denotes the size of the SCR region in the vicinity of the p-n junction between the  $p$ -GaAs substrate and the  $n$ -GaAs sample.

Thus, analysis of the absorption spectra obtained in four experimental configurations makes it possible to determine the sources and magnitudes of the quadrupole interactions in the sample. For sample S1, quadrupole interactions are caused only by deformations in different directions. However, in order to exclude the electric field on the sample surface, which can also be sources of quadrupole interaction (and, as shown by independent experiments, for sample S1 it is equal to zero), it is necessary to approximately halve the  $S_{44}$  component for the arsenic isotope in comparison with previously obtained value from work [23].

## 4.4 Conclusions

This chapter describes the development of the nuclear spin warm up spectroscopy technique for bulk  $n$ -GaAs samples. Using the S2 sample as an example, it was shown that this technique is sensitive even to small values of the quadrupole interaction, and also makes it possible to detect the presence of quadrupole interactions in the absorption spectra measured in weak external static magnetic fields (in contrast to NMR and ODNMR). The complete and debugged warm up spectroscopy technique is demonstrated using the example of sample S1. It consists of measurements of the absorption spectra of an optically cooled NSS in four experimental configurations and of fitting the obtained spectra with a theoretical model. From the fits, it is possible to determine the type and magnitude of the quadrupole interaction in the sample under study. In particular, for sample S1, it was found that the sources of the quadrupole interaction can be deformation in different directions and the built-in electric field  $F = 4$  kV/cm. However, additional EBIC experiments have shown that the electric field is close to zero on the sample surface. Therefore, in order to preserve agreement between the experimental and theoretical spectra, the component  $S_{44}$  of the gradient elastic tensor for the arsenic isotope was changed by a factor of two in comparison with the previously value from paper [23]. Such a result takes place; however, it requires additional experimental confirmation, which can be designated as a plan for further research.

## **Chapter 5. Selective cooling of nuclear spins in GaAs quantum well using adiabatic demagnetization in a rotating frame**

This chapter will be devoted to experiments aimed at achieving the minimum possible nuclear spin temperature by optical methods using the example of an undoped quantum well GaAs/Al<sub>0.35</sub>Ga<sub>0.65</sub>As. Cooling was carried out using the method of adiabatic demagnetization in a rotating coordinate system, described in Section 1. 11. Selective cooling was also implemented: that is, the nuclear spins of only one isotope were cooled. Using this method, it was possible to obtain a record low spin temperature. At the end of the chapter, calculations of the dipole-dipole and quadrupole contributions to the local fields will be presented, which are determined by the secular part of the dipole-dipole and quadrupole interactions and depend on the direction of the external magnetic field.

The results of this chapter are published in article [58].

### **5.1 Cooling of <sup>75</sup>As nuclear isotopes to record low spin temperatures by adiabatic demagnetization in a rotating frame**

The experimental technique for adiabatic demagnetization in a rotating coordinate system was described in Section 2. 2. 2. Measurements were made in a magnetic field  $B_{ext} = 7.5$  kG inclined relative to the sample growth axis. The tilt angles were  $\theta = 66^\circ$  and  $80^\circ$ . The phase of the supporting pulse relative to the unfolding  $\frac{\pi}{2}$  was also controlled. Thus, in order to obtain a negative spin temperature of the unfolded isotope, the phase shift  $\varphi = 270^\circ$  was used, and to achieve a positive spin temperature, the phase shift was equal to  $\varphi = 90^\circ$ .

The first series of experiments was carried out at an angle of static field inclination of  $\theta = 66^\circ$  and with a phase shift of the supporting field are equal to  $\varphi = 270^\circ$  and  $\varphi = 90^\circ$ . In these measurements, at the first stage, only nuclei of the <sup>75</sup>As isotope were pumped, the nuclear fields of gallium isotopes were erased by sweeping an oscillating field through their resonance frequency in the field  $B_{ext} = 7.5$  kG.  $\frac{\pi}{2}$  pulse unrolled the nuclear magnetization of the <sup>75</sup>As isotope perpendicular to the

field  $B_{ext}$  and then a supporting field was applied with an initial amplitude  $b_0 = 21$  G. At the last stage, adiabatic demagnetization took place: the supporting field was turned off to a value of  $b$ , which varied from -10 to 10 G, then the supporting field was turned off to zero and the Fourier spectrum of the free induction decay signal was measured, from which, according to the formula (from Section 2.2) through the amplitudes of the first and second harmonics, the nuclear field  $B_N$  obtained after adiabatic demagnetization was calculated for each of the values of the supporting field  $b$  (Figure 47, blue circles, red rhombuses).

The resulting dependence  $B_N(b)$  was fitted by equation (blue and red lines in Figure 47):

$$B_N(b) = B_N(b_0) \frac{b}{b_0} \sqrt{\frac{b_0^2 + B_L^2}{b^2 + B_L^2}} \quad (5.1)$$

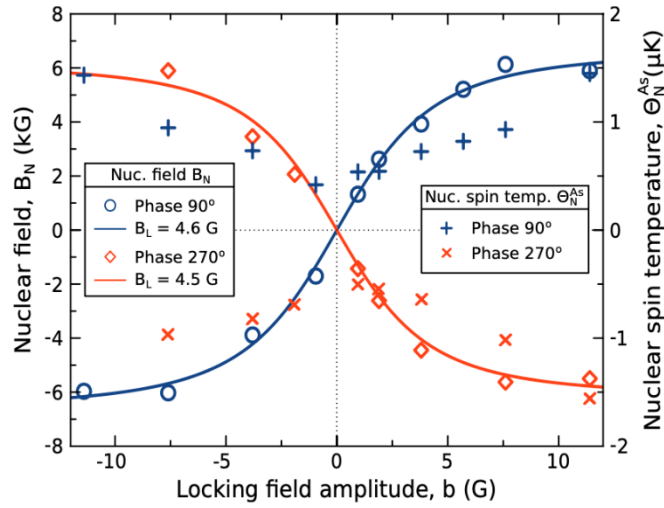


Figure 47 – Experimental dependence of the nuclear field (left ordinate) and nuclear spin temperature (right ordinate) of the unfolded  $^{75}\text{As}$  isotope on the value of the final supporting field  $b$ , in which adiabatic demagnetization took place for a phase shift  $\varphi = 90^\circ$  (blue circles and crosses for nuclear field and spin temperature, respectively) and  $\varphi = 270^\circ$  (red diamonds and crosses for the nuclear field and spin temperature, respectively) at an angle of inclination of the external field  $\theta = 66^\circ$ . The blue and red lines are fitting curves constructed according to eq. (5.1) with the value of the local field  $B_L$  as the fitting parameter.

The magnitude of the local field was used as a fitting parameter, which was  $B_L = 4.6$  G for a positive spin temperature and  $B_L = 4.5$  G for a negative spin temperature. Knowing the magnitude of the local field, one can calculate the minimum value of the nuclear spin temperature achieved as a result of adiabatic demagnetization in a field  $b = 0$ :



$$\theta_N^{As}(b=0) = \theta_N^{As}(b_0) \frac{B_L}{\sqrt{b_0^2 + B_L^2}}, \quad (5.2)$$

where  $\theta_N^{As}(b_0) = \frac{\hbar \gamma_{As} b_0 I(I+1)}{3 \langle I \rangle}$ ,  $\langle I \rangle = \frac{\hbar \gamma_e B_{\perp}(0)}{A_{As}}$  – average spin of unfolded isotope  $^{75}\text{As}$ ,  $\gamma_e = 3.52 * 10^6 \frac{\text{rad}}{\text{G*s}}$  – electron gyromagnetic ratio,  $A_{As} = 43.5 \mu\text{eV}$  – hyperfine interaction constant for  $^{75}\text{As}$  isotope. Calculated values of nuclear spin temperature  $\theta_N^{As}(b=0)$  are shown in Table 6 in bold.

Table 6 – Nuclear spin temperature values determined from experiments on adiabatic demagnetization in zero field. The values of the spin temperature achieved in the first series of experiments when only the nuclei of the  $^{75}\text{As}$  isotope are pumped are writing in bold type.

$\theta$ ( $^{\circ}$ )	$\varphi$ ( $^{\circ}$ )	$\theta_N^{As}(b=0)$ ( $\mu\text{K}$ )
80	90	1.2
66	90	1.6
	270	-2.1
	90	<b>0.54</b>
	270	<b>-0.57</b>

The second series of experiments was carried out at tilt angles of the constant field  $\theta = 66^{\circ}$  and  $\theta = 80^{\circ}$ , while at the first stage all three GaAs isotopes were pumped:  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$ . Thus, the nuclear field, which compensated for the external field at the end of the first stage, was created by the nuclear spins of all three isotopes. The rest of the steps were similar to those in the first series of experiments. The obtained values of the nuclear spin temperature  $\theta_N^{As}(b=0)$  are shown in Table 6 in normal font.

Thus, the nuclear spin temperature, obtained in the first series of experiments, is about 2-3 times less than the temperature, obtained in the second series. This is due to the fact that in the first series of experiments the nuclear field required to compensate for the external field was created only by the nuclear spins of the arsenic isotope, and then this entire field was rotated by a  $\frac{\pi}{2}$  pulse and its value was proportional to the spin temperature at which the adiabatic demagnetization began  $\theta_N^{As}(b_0)$ . In this case, in the second series of experiments, the nuclear field was created by all three isotopes, and  $\frac{\pi}{2}$  also unrolled only the magnetization of arsenic, which was about half of the achieved nuclear field (the isotopic fraction of arsenic is 0.5). Therefore, in this case, the spin temperature at which demagnetization began

was two times higher than in the first series. And accordingly, the spin temperature after demagnetization turned out to be approximately two times higher.

The previously achieved values of the nuclear spin temperature in GaAs were equal to  $5 \mu K$  in a bulk sample [7], and  $2 \mu K$  in a structure with a microcavity [26]. However, these spin temperatures were achieved by cooling the nuclear spins of all isotopes. The technique of adiabatic demagnetization in the rotating frame makes it possible to selectively cool nuclear spins and thereby achieve a spin temperature four times lower than in previous experiments.

## 5.2 Calculation of spin-spin contribution to the local field

The local field has a quadrupole and spin-spin (dipole-dipole) contributions:  $B_L^2 = B_{SS}^2 + B_{LQ}^2$ . From experiments on adiabatic demagnetization in rotating frame, it is possible to determine only the magnitude of the local field  $B_L$  itself, without dividing into two contributions. In this Section of the thesis, the calculation of the spin-spin contribution to the value of the local field in the GaAs crystal is presented. The local field will be calculated as the sum of two contributions: the contribution to the local field of nuclear spins of As atoms from other As and Ga atoms.

The squared spin-spin contribution to the local field can be calculated using the equation:

$$B_{SS}^2 = \frac{Tr[\hat{H}_{SS}^2]}{\hbar^2 \gamma_{As}^2 Tr[\hat{I}_B^2]}, \quad (5.3)$$

where  $\hat{H}_{SS}$  – the secular part (which commutes with the Zeeman interaction Hamiltonian) of the spin-spin Hamiltonian [59]:

$$\hat{H}_{SS} = \frac{1}{2} \hbar^2 \gamma_{As}^2 \sum_{j>k} r_{jk}^{-3} (1 - 3 \cos^2 \theta_{jk}) \left( 3 \hat{I}_{jk} \hat{I}_{kz} - \vec{\hat{I}}_j \vec{\hat{I}}_k \right) + \frac{1}{2} \hbar^2 \gamma_{As} \sum_{j>k'} \gamma_{kGa} [\hat{A}_{jk'} + (\hat{B}_{jk'} + r_{jk'}^{-3} (1 - 3 \cos^2 \theta_{jk'}))] \hat{I}_{jz} \hat{I}_{k'z}, \quad (5.4)$$

where  $j$  and  $k$  enumerate of As atoms, and  $k'$  – enumerate of Ga,  $r_{jk}, r_{jk'}$  - distances between  $j$ -th and  $k$ -th, and  $j$ -th and  $k'$ -th atoms,  $\theta_{jk}$  and  $\theta_{jk'}$  - angles between  $r_{jk}, r_{jk'}$  and external magnetic field direction.

The first term in the Hamiltonian takes into account the contribution of As atoms to the local field of As, and the second term takes into account the contribution of Ga atoms to the local field of As. In the second term, only the z-components of Ga nuclear spins are used, since the Larmor precession frequencies of Ga differ from those of As. This leads to non-conservation of energy Ga during flip-flop transitions with As, because of which such transitions are not included in the truncated Hamiltonian.  $\hat{A}_{jk'}$  and  $\hat{B}_{jk'}$  – exchange and pseudodipole coefficients. They are not equal to zero only for four Ga atoms, which are closest to the  $j$ -th As nucleus.

For GaAs, As nuclear spins ( $B_{As}^2$ ), four Ga nuclear spins ( $B_{Ga}^2$ ), adjacent to each As atom, as well as the spins of the remaining Ga atoms ( $B_{RGa}^2$ ) contribute to the magnitude of the spin-spin local field. The arrangement of the selected atoms in the crystal lattice is shown in Figure 48.

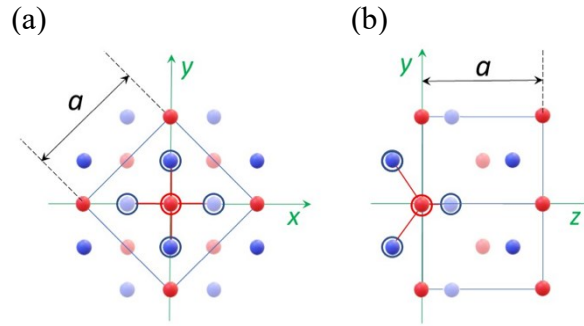


Figure 48 – Part of the GaAs crystal lattice along the crystallographic directions (a) [001] and (b) [110]. The As atom selected for the calculation is indicated by a red circled circle. Its four neighboring Ga atoms are indicated by enclosed blue circles. The remaining bright red and blue circles denote even numbers of Ga and As atoms (index  $k$ ), and dim ones denote odd numbers (index  $k'$ ).

As shown in Figure 48, each atom can be assigned a position in a given coordinate system. For As atoms:

$$x_{nk}^{As} = a \left[ \frac{\sqrt{2}}{2} n + \frac{\sqrt{2}}{4} \left( \frac{1 - (-1)^k}{2} \right) \right], \quad (5.5)$$

$$y_{lk}^{As} = a \left[ \frac{\sqrt{2}}{2} l + \frac{\sqrt{2}}{4} \left( \frac{1 - (-1)^k}{2} \right) \right], \quad (5.6)$$

$$z_k^{As} = a \frac{k}{2}, \quad (5.7)$$

where  $n, l, k$  – indices determining the positions of As atoms in the crystal lattice.

For Ga atoms:

$$x_{n'k'}^{Ga} = a \left[ \frac{\sqrt{2}}{2} n' + \frac{\sqrt{2}}{4} \left( \frac{1 - (-1)^{k'}}{2} \right) \right], \quad (5.8)$$

$$y_{l'k'}^{Ga} = a \left[ \frac{\sqrt{2}}{2} l' + \frac{\sqrt{2}}{4} \left( \frac{1 - (-1)^{k'}}{2} \right) \right], \quad (5.9)$$

$$z_k^{As} = a \left( \frac{k'}{2} - \frac{1}{4} \right), \quad (5.10)$$

where  $n', l', k'$  – indices determining the positions of Ga atoms in the crystal lattice.

Knowledge of the positions of atoms of different isotopes in the crystal lattice is necessary to calculate the trace of the square of the Hamiltonian of spin-spin interactions  $Tr[\hat{H}_{SS}^2]$ .

To calculate the trace, you also need to use the rule:

$$Tr(\hat{I}_{j\alpha} \hat{I}_{k\beta}) = \frac{I(I+1)(2I+1)}{3} \delta_{jk} \delta_{\alpha\beta}. \quad (5.11)$$

For the contribution of As atoms, the numerator in eq. (5.3):

$$Tr[\hat{H}_{SSAs}^2] = \frac{N_{As}}{2} \frac{75}{4} \left( \left( \frac{\frac{3}{2} \gamma_{As}^2 \hbar^2}{a^3} \right)^2 \right) \sum_j \frac{(1-3\cos^2\theta_j)^2}{(r_j/a)^6}, \quad (5.12)$$

where  $N_{As}$  – number of As atoms. Summation is performed over all arsenic atoms around the selected As atom.

Denominator in the eq. (5.3):

$$Tr(I_{zAs}^2) = N_{As} (\hbar \gamma_{As})^2 \frac{I(I+1)(2I+1)}{3} = 5N_{As} (\hbar \gamma_{As})^2. \quad (5.13)$$

It turns out that the contributions to the spin-spin part of the local field from As isotopes:

$$B_{LAs}^2 = \frac{15}{8} \left( \frac{3}{2} \frac{\hbar \gamma_{As}}{a^3} \right)^2 F_{As}, \quad (5.14)$$

where  $F_{As} = \sum_j \frac{(1-3\cos^2\theta_j)^2}{(r_j/a)^6}$  - dimensionless lattice sum.

For the contribution of Ga atoms, the numerator in eq. (5.3):

$$Tr[\hat{H}_{SSGa}^2] = N_{As} \frac{25}{4} \left( x_{69} \left( \frac{3}{2} \gamma_{As} \gamma_{69Ga} \hbar^2 / a^3 \right)^2 + x_{71} \left( \frac{3}{2} \gamma_{As} \gamma_{71Ga} \hbar^2 / a^3 \right)^2 \right) \sum_k \frac{(1-3\cos^2\theta_k)^2}{(r_k/a)^6}, \quad (5.15)$$

where  $x_{69}$  and  $x_{71}$  – isotopic fractions of  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{71}\text{Ga}$  atoms.

The total contribution from Ga atoms to the spin-spin part of the local field is:

$$B_{L Ga}^2 = \frac{5}{4} \left( x_{69} \left( \frac{3}{2} \hbar \gamma_{69 Ga} / a^3 \right)^2 + x_{71} \left( \frac{3}{2} \hbar \gamma_{71 Ga} / a^3 \right)^2 \right) F_{Ga}, \quad (5.16)$$

where  $F_{Ga} = \sum_k \frac{(1-3\cos^2\theta_k)^2}{(r_k/a)^6}$  - dimensionless lattice sum.

In equations above  $\theta_j$  and  $\theta_k$  - are the angles between the external magnetic field and the direction from the selected As atom to the j-th As atom and k-th Ga atom, respectively. Let's write the external magnetic field in a spherical coordinate system:  $\vec{B} = (\vec{e}_x \sin\theta \cos\alpha + \vec{e}_y \sin\theta \sin\alpha + \vec{e}_z \cos\theta)$ . Then the obtained lattice sums can be written in the following form:

$$F(\Theta, \alpha) = C + D(\sin^4\theta(\cos^4\alpha + \sin^4\alpha) + \cos^4\theta), \quad (5.17)$$

where the coefficients C and D are determined in terms of the sums  $F_{As}(\Theta, \alpha)$  and  $F_{Ga}(\Theta, \alpha)$  for two pairs of angles  $\theta$  and  $\alpha$ :

$$C = 2F\left(\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{4}\right) - F(0,0), \quad (5.18)$$

$$D = 2\left(F(0,0) - F\left(\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{4}\right)\right). \quad (5.19)$$

Coefficients C and D for different isotopes are equal: C(As) = 127.8, C(Ga) = 32, D(As) = -58.9, D(Ga) = 18.3.

Thus, the spin-spin contribution to the value of the local field depends on the direction of the external magnetic field (depends on the angles  $\theta$  and  $\alpha$ ) and is determined by the secular part of the spin-spin Hamiltonian.

### 5.3 Determination of the quadrupole contribution to the local field

The magnitude of the local field in the absence of quadrupole interactions in the sample is determined only by the spin-spin interactions inside the NSS and, according to [12], should be equal to  $B_L = B_{ss} = 1.5$  G. As noted above, the presence of quadrupole interactions increases the local field:  $B_L^2 = B_{ss}^2 + B_{LQ}^2$  and, as a consequence, increases the minimum possible nuclear spin temperature (see Section 1.9), but only if the energies of the quadrupole and spin-spin interactions are comparable (in the presence of a strong quadrupole interaction, nuclear spin temperature is not set). In the sample with QWs, these energies are comparable; therefore, spin-spin and quadrupole energy reservoirs interact with each other, and the NSS is characterized by a common spin temperature.

In the planar structure under study, it is assumed that there is no shear strain in the (x, z) and (y, z) planes. Therefore, the EGF can be caused by uniaxial deformation along the growth axis of the structure z, biaxial deformation in the (x, y) plane, as well as by a built-in electric field, which can also arise along the growth axis due to spatial or surface charges.

To determine the magnitude of the quadrupole contribution to the local field, experiments were made for different directions of the external magnetic field: the angle  $\theta = 55^\circ$  and  $66^\circ$ , which determines the direction of the field relative to the growth of the structure, and the azimuthal angle  $\alpha = 0^\circ, 45^\circ$  and  $90^\circ$ , which determines the direction of the field relative to the plane of the sample (Figure 49).

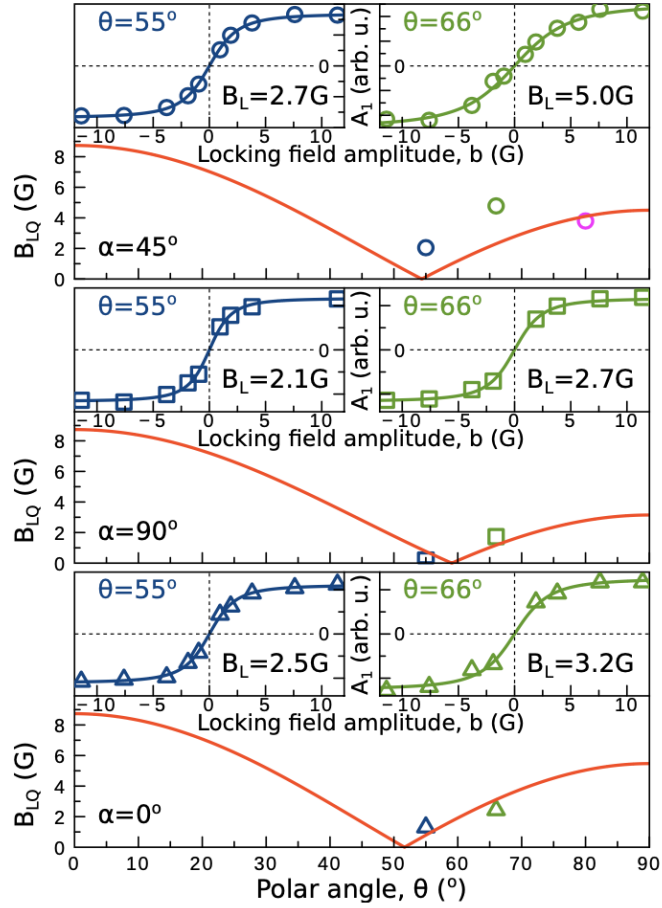


Figure 49 – Dependence of the quadrupole contribution to the local field  $B_{LQ}$  on the angle  $\theta$  for three values of the azimuthal angle:  $\alpha = 0^\circ$ ,  $45^\circ$  and  $90^\circ$  (red lines). The right and left insets in each of the three plots show experimental data on adiabatic demagnetization in rotating frame for angles  $\theta = 55^\circ$  (blue symbols) and  $\theta = 66^\circ$  (green symbols). Blue and green lines are fitting curves according to eq. (5.1), from which values of local fields  $B_L$  were determined.

From experiments on adiabatic demagnetization in VSC, the value of  $B_L$  was determined for different combinations of angles  $\theta$  and  $\alpha$  (Figure 49 blue and green lines in the insets). Thus, calculating the spin-spin contribution to the local field  $B_{SS}$  (see the previous Section) and measuring the value of the local field  $B_L$ , we can find the quadrupole contribution  $B_{LQ}$  for a particular set of angles  $\theta$  and  $\alpha$ . The values of the quadrupole contribution are shown in Figure 49 as colored symbols. The red line fitting the dependence of the quadrupole contribution on the angle  $\theta$ , is plotted according to the equation:

$$B_{LQ} = \left[ \frac{\text{Tr}[\hat{H}_Q^2]}{\hbar^2 \gamma_A^2 \text{Tr}[\hat{I}_B^2]} \right]^{1/2} = \frac{1}{4\sqrt{5}\hbar\gamma_N} |E_{Qz}(3\cos^2\theta - 1) + \sqrt{3}E_{Q\perp}\sin^2\theta\cos 2(\zeta - \alpha)|, \quad (5.20)$$

where  $E_{Q\perp} = \sqrt{E_{QR}^2 + E_{QI}^2}$ . Quadrupole parameters  $E_{QZ}, E_{QR}, E_{QI}$  are determined by eq. (4.11) – (4.13),  $\zeta$  – the angle between the principal axis of the EFG tensor in the plane and the crystal axis [100] and is given through the quadrupole parameters:

$$\cos(2\zeta) = \frac{E_{QR}}{\sqrt{E_{QR}^2 + E_{QI}^2}} \quad (5.21)$$

$$\sin(2\zeta) = \frac{E_{QI}}{\sqrt{E_{QR}^2 + E_{QI}^2}} \quad (5.22)$$

The fitting parameters were  $E_{QZ}$  and  $E_{Q\perp}$ .

For the angle  $\zeta = 134^\circ$  they obtained:  $E_{QZ} = 2 * 10^{-11} eV$  and  $E_{Q\perp} = 3 * 10^{-12} eV$ .

## 5.4 Conclusions

The final chapter of the thesis presents the results of experiments on cooling nuclear spins of the  $^{75}\text{As}$  isotope using adiabatic demagnetization in a rotating coordinate system in a sample with GaAs/AlGaAs QWs. The nuclear spins were polarized in a tilted external magnetic field, followed by adiabatic demagnetization, which consisted of a sequence of RF pulses:  $\frac{\pi}{2}$  – pulse, that unfolded the nuclei of the  $^{75}\text{As}$  isotope and a supporting pulse, the amplitude of which was lowered to zero. This decrease in amplitude provided adiabatic demagnetization. Thus, it was possible to cool the interacting nuclear dipole-dipole and quadrupole energy reservoirs to record low spin temperatures  $\theta_N^{As} = 0.54$  and  $(-0.57) \mu K$ . This is an important step towards achieving the spin temperatures of  $\sim 1 \mu K$  required to detect the polaron state.

It has also been shown experimentally that the magnitude of the local field depends on the direction of the external magnetic field with respect to the crystal axes. This dependence is made by the quadrupole contribution to the local field, which was determined from experiments on adiabatic demagnetization in the rotating frame for various sets of azimuthal and polar angles that specify the direction of the external magnetic field.



## Conclusion

This thesis is devoted to the study of an optically cooled nuclear spin system in bulk  $n$ -GaAs crystals, as well as in an undoped GaAs/AlGaAl quantum well. The experimentally unsolved problem of detecting the magnetic order of nuclear spins in semiconductors, which is theoretically possible at extremely low nuclear spin temperatures, poses a number of intermediate experimental problems. In particular, the determination of the contributions to the local field, which limits the minimum possible spin temperature, and the search for effective methods for cooling the nuclear spin system. These problems were solved for specific semiconductor structures.

The first original part of the thesis is devoted to the development of the nuclear spin warm up spectroscopy technique for bulk  $n$ -GaAs crystals. This technique consists in measuring the absorption spectra of a cooled nuclear spin system in four mutual orientations of oscillating and static magnetic fields. An analysis using a theoretical model of the obtained set of absorption spectra makes it possible to identify the type and magnitude of the quadrupole interaction in the sample. The first experiments that laid the foundation for this technique were made for sample S2 in only two experimental geometries. An elementary analysis of the absorption spectra obtained at two points on the sample showed that the source of the quadrupole interaction is different coefficients of thermal expansion of the copper holder and GaAs. A complete warm up spectroscopy technique has been demonstrated with sample S1. For example, for sample S1, theoretical analysis showed that the sources of quadrupole interactions are deformation in different directions and the built-in electric field. However, additional experiments have shown that the built-in electric field in this sample is negligible. Therefore, in order not to violate the obtained agreement between theory and experiment, it was proposed to change the previously determined value of the  $S_{44}$  tensor component for arsenic. The presence of a quadrupole interaction in sample S1 led to an increase in the local field, which was determined at the beginning of the second chapter using a nuclear spin warm up spectroscopy setup.

The second original part of the thesis is devoted to deep cooling of the nuclear spin system of the GaAs/AlGaAl quantum well using the adiabatic demagnetization method in a rotating coordinate system. This technique allows you to cool the nuclear spins of the selected isotope. So, in Chapter 5, the nuclear spin temperature of the  $^{75}\text{As}$  isotope was measured, which turned out to be a record low:  $\theta_N^{\text{As}} = 0.54$  and  $(-0.57) \mu\text{K}$ . Also, a quadrupole contribution to the local field was obtained, the value of which depended on the azimuthal and polar angles that set the direction of the external magnetic field.

As further plans, we can highlight the verification of the magnitude of the  $S_{44}$  tensor component for arsenic: selection of samples with a known deformation (or with no deformation) and their use in experiments with controlled pressure. There are also plans to carry out experiments to achieve the lowest

possible spin temperatures by optical methods and measure the behavior of the low-frequency part of the spectra of the correlator of a nuclear spin system cooled to the lowest possible temperatures.

**Acknowledgments.** The author of the thesis expresses gratitude to his scientific advisor Roman V. Cherbunin, as well as to colleagues who took an active part in this work: Kirill V. Kavokin (Spin Optics Laboratory, St. Petersburg State University), Vladimir K. Kalevich (Ioffe Institute), Maria Vladimirova (Charles Coulomb Laboratory, University of Montpellier, France), Mladen Koturu (University of Dortmund, Germany). The author is also grateful to Ivan V. Ignatiev and Maria S. Kuznetsova (Spin Optics Laboratory, St. Petersburg State University) for their support and advice throughout the entire period of postgraduate studies. The author of the thesis expresses gratitude to the RFBR (Postgraduates) for research Grant № 19-32-90084 and RFBR Project № 19-52-12043 for financial support.

**Bibliography**

1. Fetisov Y. K., Sigov A.S. Spintronics: Physical babes and devices // RENSIT – 2018. – Vol. 10. – P. 343.
2. Optical Orientation / ed. by F. Meier, B. P. Zakharchenya. – Amsterdam: North-Holland, 1984.
3. Merkulov I. A., Efros Al. L., Rosen M. Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots // Phys. Rev. B. – 2002. – Vol. 65. – P. 205309.
4. Merkulov I. A. Nuclear spin polaron formation under optical orientation in GaAs semiconductors // FTT – 1998 – Vol. 40, issue 6. – P. 1018-1021.
5. Scalbert D. Nuclear polaron beyond the mean-field approximation // Phys. Rev. B. – 2017. – Vol. 95. – P. 245209.
6. Kalevich V. K., Fleisher V. G. Optical detection of NMR with dynamic cooling of the nuclear spin system of a semiconductor by polarized light // Bull. Acad. Sci. USSR Phys.Ser. – 1983. – Vol. 47, issue 5.
7. Kalevich V. K., Kulkov V. D., Fleisher V. G. Onset of a nuclear polarization front due to optical spin orientation in a semiconductor // JETP Lett. – 1982. – Vol. 35, issue 20.
8. Dzhioev R. I., Kavokin K. V., Korenev V. L., Lazarev M. V., Meltser B. Ya., Stepanova M. N., Zakharchenya B. P., Gammon D., Katzer D. S. Low-temperature spin relaxation in *n*-type GaAs // Phys. Rev. B. – 2002. – Vol. 66. – P. 245204.
9. Bloch F. Nuclear magnetism // UFN – 1995. – Vol. LVI, issue 3.
10. Mikushev V. M., Charnaya E. V. Nuclear magnetic resonance in a solids: tutorial. – SPb: Publisher SPbU, 1995. – 204 p.
11. The principles of nuclear magnetism / A. Abragam – Oxford, University Press, 1961.
12. Paget D., Lampel G., Sapoval B., Safarov V. I. Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions // Phys. Rev. B. – 1977. – Vol. 15. – P. 5780.
13. Oja A. S., Lounasmaa O. V. Nuclear magnetic ordering in simple metals at positive and negative nanokelvin temperatures // Rev. Mod. Phys. – 1997. – Vol. 69, issue 1. – P. 1.
14. Spin Physics in Semiconductors (2<sup>nd</sup> edition) / ed. by M. I. Dyakonov – Berlin: Springer-Verlag, 2017. Ch.1.

15. Gammon D., Efros Al. L., Kennedy T. A., Rosen M., Katzer D. S., Park D. Electron and Nuclear Spin Interactions in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots // *Phys. Rev. Lett.* – 2001. – Vol. 86, issue 22.
16. Bracker A. S., Stinaff E. A., Gammon D., Ware M. E., Tischler J. G., Shabaev A., Efros Al. L., Park D., Gershoni D., Korenev V. L., Merkulov I. A. Optical Pumping of the Electronic and Nuclear Spin of Single Charge-Tunable Quantum Dots // *Phys. Rev. Lett.* – 2005. – Vol. 94. – P. 047402.
17. Braun P. F., Urbaszek B., Amand T., Marie X. Bistability of the nuclear polarization created through optical pumping in  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2006. – Vol. 74. – P. 245306.
18. Paget D. Optical detection of NMR in high-purity GaAs: Direct study of the relaxation of nuclei close to shallow donors // *Phys. Rev. B.* – 1981. – Vol. 24. – P. 3776.
19. Bloch F., Hansen W.W., Packard. M. Nuclear Induction // *Phys. Rev.* – 1946. – Vol. 69. – P. 127.
20. Purcell E. M., Torrey H. C., Pound R. V. Resonance Absorption by Nuclear Magnetic Moments in a Solid // *Phys. Rev.* – 1946. – Vol. 69. – P. 37.
21. Cross T. A., Opella S. J. Protein structure by solid-state NMR // *J. Am. Chem. Soc.* - 1983. – Vol. 105, issue 2. – P. 306–308.
22. Pyykkö P. Year-2008 nuclear quadrupole moments // *Molecular Phys.* – 2008. – Vol. 106. – P. 16-18.
23. Griffiths I. M., Huang H., Rastelli A., Skolnick M. S., Chekhovich E. A. Complete characterization of GaAs gradient-elastic tensors and reconstruction of internal strain in GaAs/AlGaAs quantum dots using nuclear magnetic resonance // *Phys. Rev. B.* – 2019. – Vol. 99. – P. 125304.
24. Brun E., Mahler R. J., Mahon H., Pierce W. L. Electrically Induced Nuclear Quadrupole Spin Transitions in a GaAs Single Crystal // *Phys. Rev.* – 1963. – Vol. 129.
25. Burenkov Yu. A., Burdukov Yu. M., Davidov S. Yu., Nikanorov S. P. // *Sov. Phys. Solid State.* – 1973. – Vol. 15. – P. 1175.
26. Vladimirova M., Cronenberger S., Scalbert D., Ryzhov I. I., Zapasskii V. S., Kozlov G. G., Lemaître A., Kavokin K. V. Spin temperature concept verified by optical magnetometry of nuclear spins // *Phys. Rev. B.* – 2018. – Vol. 97. – P. 041301 (R).
27. Kotur M., Dzhioev R. I., Vladimirova M., Jouault B., Korenev V. L., Kavokin K. V. Nuclear spin warm-up in bulk  $n$ -GaAs // *Phys. Rev. B.* – 2016. – Vol. 94. – P. 081201.

28. Vladimirova M., Cronenberger S., Scalbert D., Kotur M., Dzhioev R. I., Ryzhov I. I., Kozlov G. G., Zapasskii V. S., Lemaître A., Kavokin K. V. Nuclear spin relaxation in *n*-GaAs: From insulating to metallic regime // *Phys. Rev. B.* – 2017. – Vol. 95. – P. 125312.
29. Chekhovich E. A. Ядерные спиновые эффекты в полупроводниковых квантовых точках при оптическом возбуждении: PhD thesis: 01.04.07/ Chehovich Evgeniy Alexandrovich. – Ch., 2010. – 141 p.
30. Agekyan V. F. Semiconductors with strong magnetic properties // *SOROSOV EDUCATIONAL JOURNAL* – 2004. – Vol. 8, issue 2.
31. Merkulov I. A., Yakovlev D. R., Kavokin K. V., Mackh G., Ossau O., Waag A., Landwehr G. Hierarchy of relaxation times during the formation of an exciton magnetic polaron in (CdMn)Te // *JETP Lett.* – 1995. – Vol. 62, issue 4. – P. 313-317.
32. Kavokin K. V., Merkulov I. A., Yakovlev D. R. Magnetic polarons in semi-magnetic semiconductor heterostructures // *FTT* – 1998. – Vol. 40, issue 5. – P. 800-802.
33. Tuoriniemi J. Physics at its coolest // *Nature Physics* – 2016. – Vol. 12. – P. 11-14.
34. Zwanziger J.W., Werner-Zwanziger U., Shaw J. L., So C. Stress, strain, and NMR // *Solid State Nuclear Magnetic Resonance* – 2006. – Vol. 29. – P. 113–118.
35. Urbaszek B., Marie X., Amand T., Krebs O., Voisin P., Maletinsky P., Hogele A., Imamoglu A. Nuclear spin physics in quantum dots: An optical investigation // *Rev. of Mod. Phys.* – 2013. – Vol. 85.
36. Kuznetsova M. S., Cherbunin R. V., Gerlovin I. Ya., Ignatiev I. V., Verbin S. Yu., Yakovlev D. R., Reuter D., Wieck A. D., Bayer M. Spin dynamics of quadrupole nuclei in InGaAs quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2017. – Vol. 95. – P. 155312.
37. Kuznetsova M. S., Flisinski K., Gerlovin I. Ya., Petrov M. Yu., Ignatiev I. V., Verbin S. Yu., Yakovlev D. R., Reuter D., Wieck A. D., Bayer M. Nuclear magnetic resonances in (In,Ga)As/GaAs quantum dots studied by resonant optical pumping // *Phys. Rev. B.* – 2014. – Vol. 89. – P. 125304.
38. Flisinski K., Gerlovin I. Ya., Ignatiev I. V., Petrov M. Yu., Verbin S. Yu., Yakovlev D. R., Reuter D., Wieck A. D., Bayer M. Optically detected magnetic resonance at the quadrupole-split nuclear states in (In,Ga)As/GaAs quantum dots // *Phys. Rev. B.* – 2010. – Vol. 82. – P. 081308.
39. Makhonin M. N., Kavokin K. V., Senellart P., Lemaître A., Ramsay A. J., Skolnick M. S., Tartakovskii A. I. Fast control of nuclear spin polarization in an optically pumped single quantum dot // *Nature Materials.* – 2011. – Vol. 10.
40. Chekhovich E. A., Kavokin K. V., Puebla J., Krysa A. B., Hopkinson M., Andreev A. D., Sanchez A. M., Beanland R., Skolnick M. S., Tartakovskii A. I. Structural analysis

- of strained quantum dots using nuclear magnetic resonance // *Nat. Nanotechnology*. – 2012. – T. 7. – С. 646 – 650.
41. Signorello G. Uniaxial Stress Effects in Zincblende and Wurtzite GaAs Nanowires: an Optical Spectroscopy Study: дисс. PhD / Giorgio Signorello. – Basel, 2014. – 218 с.
  42. Sundfors R.K. Determination of the Gradient-Elastic Tensors for A3B5 Compounds Using Nuclear Acoustic Resonance // *Phys. Rev.* – 1969. – Т. 177, №3. – С. 177.
  43. Sundfors R.K. Experimental gradient-elastic tensors and chemical bonding in III-V semiconductors // *Phys. Rev. B.* – 1974. – Т.10, №10.
  44. Chekhovich E. A., Griffiths I. M., Skolnick M. S., Huang H., Covre da Silva S. F., Yuan X., Rastelli A. Cross calibration of deformation potentials and gradient-elastic tensors of GaAs using photoluminescence and nuclear magnetic resonance spectroscopy in GaAs/AlGaAs quantum dot structures // *Phys. Rev. B.* – 2018. – Vol. 97. – P. 235311.
  45. Guerrier D. J., Harley R.T. Calibration of strain vs nuclear quadrupole splitting in III-V quantum wells // *Apply Phys. Let.* – 1997. – Vol. 70. – P. 1739.
  46. Eickhoff M., Lenzmann B., Suter D., Hayes S.E., Wieck A. Mapping of strain and electric fields in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>(1-x)</sub>As quantum-well samples by laser-assisted NMR // *Phys. Rev. B.* – 2003. – Vol. 67. – P. 085308.
  47. Shulman R. G., Wyluda B. J., Anderson P. W. Nuclear Magnetic Resonance in Semiconductors II. Quadrupole Broadening of Nuclear Magnetic Resonance Lines by Elastic Axial Deformation // *Phys. Rev.* – 1957. – Vol. 107, issue 4. – P. 953-958.
  48. Carlos W. E., Bishop S. G., Treacy D. J. Nuclear-magnetic-resonance studies of strain in isovalently doped GaAs // *Phys. Rev. B.* – 1991. – Vol. 43, issue 15.
  49. Redfield A. Nuclear Spin Thermodynamics in the Rotating Frame // *Science* – 1969. – Vol. 164, issue 3883. – P. 1015-1023.
  50. Slichter C. P., Holton W. Adiabatic Demagnetization in a Rotating Reference System // *Phys. Rev.* – 1961. – Vol. 122, issue 6. – P. 1701-1708.
  51. Polymer physics /Bartenev G. M., Frenkel S.Ya. – Leningrad, Chemistry, 1990.
  52. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kavokin K. V. and Kalevich V. K. Determination of the local field in the nuclear spin system of n - type GaAs // *IOP Conf. Series: Journal of Physics.* – 2018. – Vol. 951. – P. 012006.
  53. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kavokin K. V. and Kalevich V. K. Determination of the Quadrupole Splitting in Bulk n - GaAs by Warm - Up Spectroscopy // *Semiconductors.* – 2020. – Vol. 54. – P. 1728-1729.
  54. Litvyak V. M., Cherbunin R. V., Kalevich V. K., Lihachev A. I., Nashchekin A. V., Vladimirova M. and Kavokin, K.V. Warm-up spectroscopy of quadrupole-split nuclear

- spins in n-GaAs epitaxial layers // *Physical Review B.* – 2021. – Vol. 104, issue 23. – P. 235201.
55. Yin Y., Yan D., Pollak F. H., Pettit G. D., Woodall J. M. Observation of Franz-Keldysh oscillations in the stress-modulated spectra of (001) n-type GaAs // *Phys. Rev. B.* – 1991. – Vol. 43. – P. 12138.
56. Fitzsimmons M. R., Kirby B. J., Hengartner N. W., Trouw F., Erickson M. J., Flexner S. D., Kondo T., Adelman C., Palmstrøm C. J., Crowell P. A., Chen W. C., Gentile T. R., Borchers J. A., Majkrzak C. F., Pynn R. Suppression of nuclear polarization near the surface of optically pumped GaAs // *Phys. Rev. B.* – 2007. – Vol. 76. – P. 245301.
57. King J. P., Li Y., Meriles C. A., Reimer J. A. Optically rewritable patterns of nuclear magnetization in gallium arsenide // *Nature Communication* – 2012. – Vol. 3. – P. 918.
58. Kotur M., Tolmachev D. O., Litvyak V. M., Kavokin K. V., Suter D., Yakovlev D. R. and Bayer M. Ultra - deep optical cooling of coupled nuclear spin - spin and quadrupole reservoirs in a GaAs/(Al, Ga)As quantum well // *Communications Physics.* – 2021. – Vol. 4. - P. 193.
59. Clough S., Coldburg W.I. Nuclear magnetic resonance study of electron coupled internuclear interactions in Thallium Chloride // *The Journal of Chemical Physics* – 1966. – Vol. 456. – P. 4080.

## List of Figures

- Figure 1 – Dependence of the relaxation time of the average electron spin on the donor impurity concentration in bulk  $n$ -GaAs samples. The symbols show the experimental results, the solid line shows the calculation. The dotted line shows the dependence of the correlation time of the electron spin  $\tau_c$  from donor concentrations [8]. ..... 145
- Figure 2 – Mutual directions of the external magnetic field  $\mathbf{B}_Z$  (black arrow), Overhauser field  $\mathbf{B}_N$ , average nuclear spin  $\langle \mathbf{I} \rangle$  (green arrow) and Knight field  $\mathbf{B}_e$  (blue arrow). ..... 151
- Figure 3 – (a) Schematic representation of four nuclear spin projections ( $m = -3/2, -1/2, 1/2$  и  $3/2$ ) at the external magnetic field direction  $\mathbf{B} = (0, 0, B_Z)$  (b) Splitting the degenerate energy level into four levels with the values of the nuclear spin projections ( $m = -3/2, -1/2, 1/2$  и  $3/2$ ) at the external magnetic field  $\mathbf{B}$ . ..... 153
- Figure 4 – Macroscopic magnetization  $\mathbf{M}$  (purple arrow) for the case  $I = 1/2$ . Red arrow indicates the direction of the external magnetic field  $\mathbf{B}$ . Blue arrows “up” indicate the number of nuclear spins projected onto an axis  $Z$   $m = +1/2$ , blue arrows “down” denote the number of nuclear spins with the projection  $m = -1/2$ . Since there are more spins with  $m = +1/2$ , than spins with  $m = -1/2$ , the total macroscopic magnetization is determined by nuclear spins with  $m = +1/2$  (purple arrow) and has a direction along the external field. .... 155
- Figure 5 – Schematic representation of the shift of nuclear spin energy levels in an external magnetic field due to the presence of quadrupole interaction. The frequency of the central transition remains unchanged, and the frequencies of neighboring transitions are shifted by the amount  $\pm\omega Q'$ , which is proportional to the magnitude of the quadrupole interaction in the sample. .... 159
- Figure 6 – Dependence of two contributions to the spin-lattice relaxation rate on the magnetic field (yellow line): relaxation due to hyperfine interaction and spin diffusion to the donor at a rate  $1/T_D$  (horizontal dashed line), and quadrupole relaxation at a rate  $1/T_Q$  [27]. .... 162
- Figure 7 – Dependence of the spin-lattice relaxation rates on the magnetic field for bulk samples, obtained using the spin noise (SN) and polarized PL (PL) methods (a), and samples in a microcavity with different donor impurity concentrations (b). The inset shows the behavior of relaxation rates in magnetic fields up to 20 G [28]. .... 163
- Figure 8 – Scheme of the formation of a magnetic polaron: (a) nonmagnetic localization of an electron in a crystal lattice (blue arrows indicate the moments of single magnetic atoms, red arrows indicate the magnetic moment of an electron); (b) potential well corresponding to non-magnetic



- localization; (c) the same region of the lattice after the formation of the magnetic polaron; d is a potential well, the depth of which is determined by the sum of the energies of nonmagnetic (1) and magnetic (2) localization [30]. ..... 168
- Figure 9 – Schematic illustrations of Zeeman  $H_Z$ , spin-spin  $H_{SS}$  and lattice  $H_L$  energy reservoirs for cases of weak (a) and strong (b) magnetic fields. .... 171
- Figure 10 – Zeeman distribution of nuclear spins (the case for the nuclear spin  $I=1/2$ ) and spin-spin distribution by energy levels for three possible combinations of signs of spin temperatures: (a)  $\theta_Z > 0$ ,  $\theta_{SS} > 0$ , (b)  $\theta_Z < 0$ ,  $\theta_{SS} > 0$ , (c)  $\theta_Z < 0$ ,  $\theta_{SS} < 0$ . The splitting of the Zeeman levels is caused by spin-spin interactions..... 171
- Figure 11 – Record low nuclear spin temperatures obtained in the metals Cu, Ag and Rh from the 1970s to 2010 [33]. ..... 173
- Figure 12 – Calculation of the average polaron spin  $j_T$  depending on the normalized nuclear spin temperature  $t = \theta_N/\theta_C$  within the framework of the mean field theory (black line) and taking into account the finite number of nuclear spins included in the polaron (colored lines) [5]..... 174
- Figure 13 – Schematic representation of a nucleus with a non-spherical charge distribution. It can be thought of as a spherically symmetric charge distribution plus a positive charge and a negative charge band around the equator. .... 176
- Figure 14 – (a) Schematic illustration of the direction of splitting in InAs/GaAs QD; (b) Splitting of nuclear spin energy levels into a system of doublets for spin  $I = 9/2$ . .... 177
- Figure 15 – Evolution of the spin noise signal during adiabatic demagnetization (field range from -50 G to 0 G) and magnetization (field range from 0 to 50 G) for a MC sample (a), (d) and for a bulk sample (c), (d). Black dashed lines indicate fitting functions for experimental data on a MC sample, red dotted lines indicate fitting functions with a fixed value of the local field  $B_L = 2$  G, which is expected for a bulk sample..... 183
- Figure 16 – Nuclear spin temperature behavior  $\theta$  and nuclear magnetization behavior  $M$  during the adiabatic demagnetization process. .... 188
- Figure 17 – Experimental setup for nuclear spin warm up spectroscopy of bulk  $n$ -GaAs samples. The red lines show the path of the pump beam and the PL signal. Coils are marked in blue, which create constant magnetic fields along the ( $B_Z$ ) and across ( $B_x$ ) the pump beam. The currents through these coils are controlled by a two-channel power supply. Oscillating field coils are marked in orange, which also create fields in two directions: along ( $B_{Z1}$ ) and across ( $B_{x1}$ ) the pump beam. The frequency and amplitude of the oscillating current passing through coils is regulated by a two-channel function generator. .... 191
- Figure 18 – PL spectra (solid lines) and PL polarizations (open circles) measured with a CCD camera at temperatures  $T = 10 - 20$  K for three samples. The black vertical line shows the detection

- wavelength  $\lambda_{det} = 817 \text{ nm}$  and the corresponding degrees of PL polarization for three samples. .... 192
- Figure 19 – Scheme of a two-channel photon counter. The pulses of the avalanche photodiode (PD) are fed to the discriminator and are strobed using a 4-AND microchip, after which they are counted as a counter. The second harmonic reference signal from the photoelastic modulator is delayed by an analog timer 555 and determines the moment the gate starts. The end of the gate is set by the microcontroller. For this, the signal of the first harmonic of the photoelastic modulator is fed to the input of the hardware interrupt. .... 194
- Figure 20 – Schematic diagram of the synchronization of photoelastic modulator (PEM) half-period and photon counter gate. .... 194
- Figure 21 – (a) Dependence of polarization degree on the gate width. The arrow shows the selected gate width; (b) Measurement of lamp polarization degree over time. This figure shows the stability of the signal over time, as well as the accuracy of determining the polarization degree. .... 195
- Figure 22 – PL depolarization curves (Hanle curves) measured at the detection wavelength  $\lambda_{det} = 816 \text{ nm}$  for pump powers 5, 15 и 25 mW (blue, green and red dots). Fitting the obtained curves by Lorentz functions (blue, green and red lines). Dependence of the half-width at half-height of the Lorentz functions  $B_{1/2}$  from pump power (inset), from which the electron spin lifetime is obtained:  $T_S = 2.7 \text{ ns}$ . .... 196
- Figure 23 – An example of a two-stage experiment, in which first the polarization of nuclear spins occurs by the optical cooling method, and then the resulting nuclear field is measured. To extract the nuclear field, one can use (a) a linear fit of the second measurement stage (gray dashed line) or (b) a fit that takes into account the entire polarization dynamics (gray dashed line). .... 197
- Figure 24 – Examples of two-stage curves for cooling times  $t_{cooling} = 2, 3$  and 4 minutes at longitudinal magnetic field  $B_Z = 100 \text{ G}$ . Dependence of the nuclear field on the cooling time (inset, points). Linear fit of the resulting dependency (insert, line). .... 198
- Figure 25 – Examples of two-stage curves for cooling times  $t_{cooling} = 4 \text{ min}$  in longitudinal magnetic fields:  $B_Z = 57, 85, 114, 171$  and 228 G. Dependence of the nuclear field on the value of the longitudinal field (inset, points). .... 199
- Figure 26 – Schematic representation of four experimental geometries: (a), (b) transverse geometries; (c), (d) longitudinal geometries. The directions of the oscillating, static magnetic fields and the pump beam are indicated by purple, blue, and red arrows, respectively. .... 201
- Figure 27 – (a) Four-stage experimental protocol; (b) Experimental curves obtained using a four-stage protocol for sample S1. The change in the PL polarization degree  $\rho$  was measured as a function of time. The green curve corresponds to the experiment at the frequency of maximum absorption in zero static magnetic field:  $f = 12 \text{ kHz}$ . The blue curve corresponds to the experiment in the

- absence of an oscillating magnetic field. The red curves are adjustable and are plotted according to eq. (2.7). ..... 205
- Figure 28 – Experimental setup for nuclear spins adiabatic demagnetization experiments in a rotating frame..... 208
- Figure 29 – The photoluminescence spectrum for a 19.7 - nm quantum well, obtained at a temperature of  $T = 5.5$  K (black curve). The PL polarization spectrum is shown by blue circles. The dashed vertical line marks the detection energy used in the measurements. .... 208
- Figure 30 – Experimental protocol on adiabatic demagnetization of nuclear spins in a rotating coordinate system, consisting of three stages: (b) pumping a sample with circularly polarized light in an external inclined magnetic field  $B_{ext} = 7.5$  kG (brown arrow) and the creation of nuclear magnetization  $M_{As}$  (and  $M_{Ga}$  for the case when Ga isotopes were not erased); (c) applying of  $\pi/2$  pulse (green arrow), which rotated the average nuclear magnetization of the isotope  $^{75}As$  by  $90^\circ$  (blue arrow). The red arrow indicates the direction of the nuclear magnetization created by Ga isotopes if the nuclear field of Ga isotopes is not erased at the first stage; (d) applying of a support pulse, phase-shifted by  $\varphi = 90^\circ$  or  $\varphi = 270^\circ$  relatively to  $\pi/2$  pulse. It has a parallel direction with respect to the turned nuclear magnetization in the rotating frame; then, at the third stage, the support pulse was turned off, the free induction decay signal was measured and its Fourier transform presented in inset (e). ..... 210
- Figure 31 – An example of the time dependence of PL polarization degree, measured according to the three-stage protocol (blue curve): I) NSS in the dark for 250 s; II) optical cooling in the longitudinal field  $B_z = 100$  G during 10 s; III) Measuring stage in a transverse field  $B_x = 5.15$  G. Fit by eq. (2.10) is indicated by a red dashed line. .... 213
- Figure 32 – Experimental dependence of the nuclear field  $B_{N0}$  on the measuring field  $B_x$  (blue circles). Fitting the obtained dependence by eq. (2.11) with the value of the local field as a fitting parameter:  $B_L = 4$  G (red curve),  $B_L = 6$  G (blue curve) и  $B_L = 8$  G (green curve). The best fit is the local field  $B_L = 6$  G. .... 214
- Figure 33 – Absorption spectrum (a) and correlator spectrum (b) at zero static magnetic field of the cooled NSS of the *n*-GaAs sample measured at the lattice temperature  $T = 4.2$  K [6]. ..... 217
- Figure 34 – Absorption spectra in zero magnetic field for samples S1, S2 и S3..... 218
- Figure 35 – Absorption spectra in zero magnetic field measured at various points on the surface of sample S2. .... 219
- Figure 36 – Absorption spectra for sample S2, measured in longitudinal experimental geometry, when  $B_x || B_{x1}$ , for two points on the sample: B (a) и A (b). ..... 220
- Figure 37 – Absorption spectra for sample S2, measured in transverse experimental geometry when  $B_z \perp B_{x1}$ , for two points on the sample: B (a) и A (b). .... 221

Figure 38 – (a) Absorption spectrum measured at point A in field  $\mathbf{B}_Z = 35 \text{ G}$  (black circles). The absorption peaks corresponding to the central transitions  $-1/2 \rightarrow 1/2$  for  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes are fitted by the Lorentz functions (red, green, and blue solid lines). Satellite absorption peaks for  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes are also fitted by Lorentz functions (green and blue dashed lines); (b) Absorption spectrum of  $^{75}\text{As}$  isotope, measured at point B in static field  $\mathbf{B}_Z = 100 \text{ G}$  (black circles). The absorption peak corresponding to the central transition  $-1/2 \rightarrow 1/2$ , is also fitted by Lorentz function (blue solid line). Satellite peaks are also fitted by Lorentz functions (blue dashed lines); (c) Frequency positions of absorption peaks depending on the value of the static magnetic field  $\mathbf{B}_Z$  for the point A, corresponding to central transitions  $-1/2 \rightarrow 1/2$  for  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes (red, green and blue circles respectively). Red, green, and blue solid lines through the circles correspond to the calculated gyromagnetic ratios for  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes. Green and blue crosses and hollow circles correspond to the frequency positions of the satellite peaks for  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$ ; (d) Frequency positions of absorption peaks depending on the value of the static magnetic field  $\mathbf{B}_Z$  for the point B, corresponding to central transitions  $-1/2 \rightarrow 1/2$  for  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes (red, green and blue circles respectively). Red, green and blue solid lines passing through the circles correspond to the calculated gyromagnetic ratios for  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{75}\text{As}$  isotopes..... 222

Figure 39 – Absorption spectra in zero magnetic field for sample S1 at four different points on the sample, obtained using a four-stage experimental protocol. The spectra contain two absorption peaks: at frequencies  $f_1 = (4-7) \text{ kHz}$  and  $f_2 = (12-22) \text{ kHz}$ . The dependences of the frequency position of each peak on a point on the sample are shown by dashed lines. For comparison with the absorption spectra from other samples, the spectrum for sample S1 at point 2 is shown in Figure 34 in red..... 226

Figure 40 – Unnormalized absorption spectra for sample S1 measured in two longitudinal experimental configurations: (a)  $\mathbf{B}_x \parallel \mathbf{B}_{x1}$  and (b)  $\mathbf{B}_Z \parallel \mathbf{B}_{Z1}$  ..... 227

Figure 41 – Unnormalized absorption spectra for sample S1 measured in two transverse experimental configurations: (a)  $\mathbf{B}_Z \perp \mathbf{B}_{x1}$  and (b)  $\mathbf{B}_x \perp \mathbf{B}_{Z1}$ ..... 228

Figure 42 – Zeeman (red lines) and quadrupole + Zeeman (black lines) energy levels of nuclear spins of the  $^{75}\text{As}$  isotope in external fields (a)  $\mathbf{B}_x$  and (b)  $\mathbf{B}_Z$ . The arrows show the allowed types of transitions for four experimental geometries: four types of transitions for each transverse geometry (dark green and light blue arrows) and two types of transitions for each longitudinal geometry (light green and blue arrows). ..... 229

Figure 43 – Examples of absorption spectra in transverse geometry  $\mathbf{B}_x \perp \mathbf{B}_{Z1}$  for  $\mathbf{B}_x = 8.7, 19.3 \text{ and } 29 \text{ G}$  (blue dots). Lorentz fit of the observed absorption peaks (green lines). The red lines show the total fitting functions. .... 230

- Figure 44 – Experimental (colored dots) and theoretical (colored lines) absorption spectra for two transverse (a), (b) and two longitudinal (c), (d) configurations. All spectra are normalized to integral absorption. Black, red and green dashed lines show the evolution of absorption peaks for  $^{75}\text{As}$ ,  $^{71}\text{Ga}$  and  $^{69}\text{Ga}$  isotopes respectively. .... 234
- Figure 45 – Three-dimensional representation (colormap) of the calculated absorption spectra in two transverse: (a)  $\mathbf{B}_z \perp \mathbf{B}_{x1}$  and (b)  $\mathbf{B}_x \perp \mathbf{B}_{z1}$  and two longitudinal: (d)  $\mathbf{B}_z \parallel \mathbf{B}_{z1}$  and (e)  $\mathbf{B}_x \parallel \mathbf{B}_{x1}$  geometries. The color shows the calculated absorption intensity. White circles indicate the frequency positions of the experimental absorption peaks obtained from the fitting of the spectra by the Lorentz functions. The sizes of the circles are proportional to the integrated absorption intensity of each peak observed in the experiment. To the right of the colormaps are plots of the integral absorption versus each experimental (red and black symbols) and calculated (red and black lines) spectrum in four geometries: (c) two transverse and (f) two longitudinal. .... 235
- Figure 46 – The current induced by the electron beam (black line) and its derivative (blue line) depending on the position of the beam on the sample cleavage (sample S1). The pink vertical bar denotes the size of the SCR region in the vicinity of the p-n junction between the *p*-GaAs substrate and the *n*-GaAs sample. .... 237
- Figure 47 – Experimental dependence of the nuclear field (left ordinate) and nuclear spin temperature (right ordinate) of the unfolded  $^{75}\text{As}$  isotope on the value of the final supporting field  $\mathbf{b}$ , in which adiabatic demagnetization took place for a phase shift  $\varphi = 90^\circ$  (blue circles and crosses for nuclear field and spin temperature, respectively) and  $\varphi = 270^\circ$  (red diamonds and crosses for the nuclear field and spin temperature, respectively) at an angle of inclination of the external field  $\theta = 66^\circ$ . The blue and red lines are fitting curves constructed according to eq. (5.1) with the value of the local field  $\mathbf{B}_L$  as the fitting parameter. .... 240
- Figure 48 – Part of the GaAs crystal lattice along the crystallographic directions (a) [001] and (b) [110]. The As atom selected for the calculation is indicated by a red circled circle. Its four neighboring Ga atoms are indicated by enclosed blue circles. The remaining bright red and blue circles denote even numbers of Ga and As atoms (index  $\mathbf{k}$ ), and dim ones denote odd numbers (index  $\mathbf{k}'$ ). .... 243
- Figure 49 – Dependence of the quadrupole contribution to the local field  $\mathbf{BLQ}$  on the angle  $\theta$  for three values of the azimuthal angle:  $\alpha = 0^\circ, 45^\circ$  and  $90^\circ$  (red lines). The right and left insets in each of the three plots show experimental data on adiabatic demagnetization in rotating frame for angles  $\theta = 55^\circ$  (blue symbols) and  $\theta = 66^\circ$  (green symbols). Blue and green lines are fitting curves according to eq. (5.1), from which values of local fields  $\mathbf{B}_L$  were determined. .... 247

### List of Tables

Table 1 – Nuclear gyromagnetic ratios for GaAs isotopes. ....	147
Table 2 –The values of the quadrupole interaction constants for the GaAs isotopes [22].....	157
Table 3 – Values of tensor components for GaAs isotopes, which describe various types of deformations leading to the appearance of EFG. * The table shows the values of the $R_{14}$ component from [24], but recalculated taking into account the newer quadrupole constants from [22]......	159
Table 4 – Characteristics of n-GaAs samples, which were investigated using the method of nuclear spin warm up spectroscopy. ....	190
Table 5 – Values of quadrupole energy parameters for three GaAs isotopes obtained by fitting the calculated absorption spectra to the experimental ones. ....	236
Table 6 – Nuclear spin temperature values determined from experiments on adiabatic demagnetization in zero field. The values of the spin temperature achieved in the first series of experiments when only the nuclei of the $^{75}\text{As}$ isotope are pumped are writing in bold type. ....	241