

## ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ СКОРОСТИ РЕЛАКСАЦИИ АКЦЕПТОРНОГО ЦЕНТРА В КРЕМНИИ $\mu^-$ -SR-МЕТОДОМ

Т.Н.Мамедов<sup>1)</sup>, Д.Г.Андрианов<sup>+</sup>, Д.Герлах\*, К.И.Грицай, В.Н.Горелкин<sup>□</sup>,  
О.Корманн<sup>△</sup>, Я.Майор<sup>△,▽</sup>, А.В.Стойков, М.Шевчик<sup>▽</sup>, У.Циммерман\*

Объединенный институт ядерных исследований  
141980 Дубна, Московская обл., Россия

<sup>+</sup> Государственный научно-исследовательский и проектный институт  
редкометаллической промышленности "Гиредмет"  
109017 Москва, Россия

\* Paul Scherrer Institut, CH-5232 Villigen PSI, Switzerland

<sup>□</sup> Московский физико-технический институт  
141700 Долгопрудный, Московская обл., Россия

<sup>△</sup> Max-Planck-Institut für Metallforschung, D-70569 Stuttgart, Germany

<sup>▽</sup> Universität Stuttgart, Institut für Theoretische und Angewandte Physik  
D-70569 Stuttgart, Germany

Поступила в редакцию 13 апреля 2000 г.

Приведены результаты исследований температурной зависимости остаточной поляризации отрицательных мюонов в кристаллическом кремнии с примесью фосфора ( $3.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$ ,  $2.3 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$  и  $4.5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ) и алюминия ( $2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$  и  $2.4 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ). Измерения были выполнены в поперечном спину мюона магнитном поле 2000 Гс в диапазоне температур 4 – 300 К. Определена температурная зависимость скорости релаксации магнитного момента мелкого акцепторного центра Al в недеформированном образце кремния и получена оценка величины константы сверхтонкого взаимодействия магнитных моментов мюона и электронной оболочки мюонного атома  $\mu$ Al в кремнии.

PACS: 76.75.+i

В полупроводниках с кристаллической структурой алмаза мелкие акцепторные центры, в отличие от мелких доноров, как теоретически, так и экспериментально исследованы недостаточно [1]. Например, современные теоретические расчеты расходятся в предсказании энергии основного состояния мелкого акцептора в таких полупроводниках как Si, GaP, InP (см. [2–4]). Известно всего несколько экспериментальных работ, в которых мелкие акцепторные центры в кремнии изучались методом электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) [5–8].

Как было показано в теоретической [9] и экспериментальных [10–13] работах, метод вращения спина отрицательного мюона ( $\mu^-$ -SR) позволяет изучать поведение акцепторных центров в полупроводниках, и его результаты могут существенно дополнить данные, получаемые другими ядерно-физическими методами.

Поведение поляризации отрицательного мюона в кремнии зависит от зарядового состояния акцепторного центра, образующегося в результате захвата мюона атомом

<sup>1)</sup> e-mail: tmamedov@nu.jinr.ru

кремния. Поскольку кремний является диамагнитным веществом (влияние изотопа  $\text{Si}^{29}$  с отличным от нуля ядерным магнитным моментом пренебрежимо мало), то в ионизованном (диамагнитном) состоянии акцепторного центра во внешнем, поперечном спину мюона магнитном поле должна наблюдаться незатухающая во времени прецессия вектора поляризации на частоте свободного спина. В нейтральном (парамагнитном) состоянии возможны релаксация и сдвиг частоты прецессии спина мюона из-за взаимодействия магнитных моментов мюона и электронной оболочки акцепторного центра. Магнитный момент мелкого акцепторного центра в кремнии характеризуется квантовым числом  $j = 3/2$  [14]. Аналитические выражения для поведения поляризации отрицательных мюонов в случае  $j \geq 1$  были получены Горелкиным и др. [15]. В предположении, что скорость релаксации магнитного момента электронной оболочки ( $\nu$ ) намного больше константы сверхтонкого взаимодействия магнитных моментов мюона и электронной оболочки ( $A_{hf}$ ), сдвиг частоты прецессии ( $\Delta\omega$ ) и скорость релаксации спина мюона ( $\lambda$ ) зависят от  $A_{hf}$  и  $\nu$  следующим образом [15]:

$$\frac{\Delta\omega}{\omega_0} = \frac{g\mu_B}{2\mu_\mu} \cdot \frac{j(j+1)\hbar A_{hf}}{3k_B T} + \frac{A_{hf}^2}{2(\nu^2 + \omega_e^2)}, \quad (1)$$

$$\lambda = \frac{j(j+1)}{3} \left( \frac{A_{hf}^2}{\nu} + \frac{A_{hf}^2 \nu}{\nu^2 + \omega_e^2} \right), \quad (2)$$

где  $\Delta\omega = \omega(T) - \omega_0$  ( $\omega_0$  – угловая частота прецессии спина мюона в диамагнитном состоянии мюонного атома);  $\hbar = 2\pi\hbar$  – постоянная Планка;  $k_B$  – постоянная Больцмана;  $\mu_B$  и  $\mu_\mu$  – магнетон Бора для электрона и мюона, соответственно;  $g$  –  $g$ -фактор акцепторного центра;  $\omega_e = g\mu_B B/\hbar$  – угловая частота прецессии магнитного момента электронной оболочки акцепторного центра во внешнем магнитном поле  $B$ .

В случае  $j = 1/2$  выражения (1) и (2) совпадают с хорошо известными формулами для положительного мюона в атоме мюония (см., например, [16]).

В настоящей работе представлены результаты  $\mu^-$ -SR исследований для пяти монокристаллических образцов кремния (три образца  $n$ -типа с примесью фосфора:  $3.2 \cdot 10^{12}$ ,  $2.3 \cdot 10^{15}$ ,  $4.5 \cdot 10^{18}$   $\text{см}^{-3}$  и два образца  $p$ -типа с примесью алюминия:  $2 \cdot 10^{14}$ ,  $2.4 \cdot 10^{18}$   $\text{см}^{-3}$ ).

Измерения были выполнены на установке “Stuttgart  $\mu$ SR Spectrometer” [17] расположенной на мюонном канале  $\mu\text{E4}$  ускорителя протонов института Пауля Шеррера (Швейцария). Поперечное спину внешнее магнитное поле, создаваемое кольцами Гельмгольца на образце, составляло 2000 Гс. Температура образцов стабилизировалась с точностью 0.1 К в диапазоне (4.2 – 300) К. Ширина временного канала спектрометра составляла 0.625 нс, общее количество каналов в спектре было 16000.

Процедура восстановления функции поляризации отрицательного мюона из экспериментальных  $\mu^-$ -SR спектров подробно описана в [13]. Из экспериментальных данных определялись температурные зависимости скорости релаксации и сдвига частоты прецессии спина мюона для релаксирующей компоненты поляризации, а в случае наблюдения релаксирующего и нерелаксирующего компонентов также их относительные амплитуды и скорость ионизации акцепторного центра (переход  ${}_\mu\text{Al}^0 \rightarrow {}_\mu\text{Al}^-$ ).

Экспериментальные результаты по температурной зависимости скорости релаксации спина мюона для двух образцов кремния с примесью алюминия и для образца

с примесью фосфора ( $4.5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ) представлены на рис.1 и 2, соответственно. В кремнии с высокой концентрацией примеси фосфора ( $4.5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ), так же как ранее [13] для образца с примесью сурьмы ( $2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ), обнаружены релаксирующий и нерелаксирующий компоненты в прецессии спина мюона при  $T \lesssim 30 \text{ К}$ . Соответственно, для данного образца из экспериментальных данных кроме  $\Delta\omega$  и  $\lambda$  была определена  $\nu_{tr}$  – скорость ионизации акцепторного центра. Температурная зависимость  $\nu_{tr}$  приведена на рис.2. Для всех остальных исследованных образцов, в том числе и в случае высокой концентрации примеси алюминия ( $2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ), наблюдалась только релаксирующая компонента в поляризации спина мюона при  $T < 50 \text{ К}$ , при этом амплитуда прецессии спина мюона в нулевой момент времени соответствовала амплитуде прецессии при комнатной температуре.

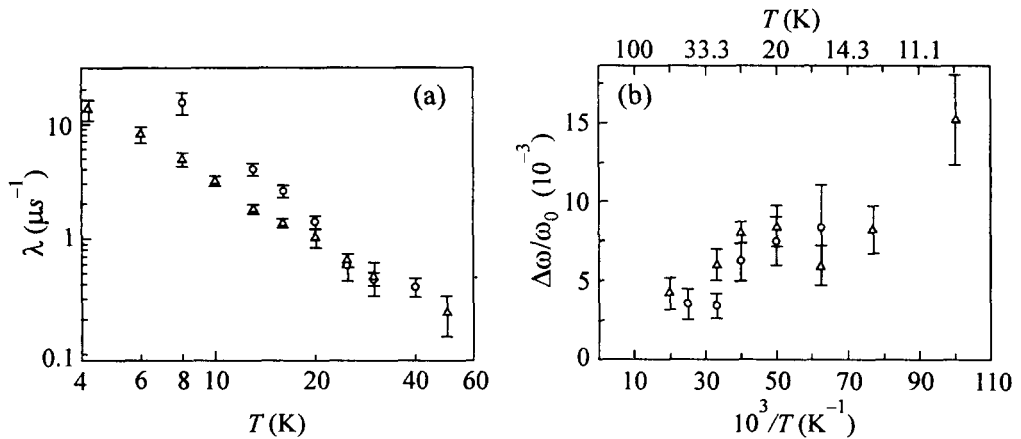


Рис.1. Температурные зависимости скорости релаксации (а) и сдвига частоты прецессии спина мюона (б) для образцов кремния с различной концентрацией примеси алюминия:  $\circ$  –  $2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ ,  $\Delta$  –  $2.4 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$

Температурная зависимость сдвига частоты для всех исследованных образцов не противоречит  $1/T$  закону Кюри (см., например, рис.1). Это означает, что вклад второго слагаемого в выражении (1) для сдвига частоты, по сравнению с первым – парамагнитным членом, мал. В пренебрежении вторым членом в (1) из экспериментальных данных по  $\Delta\omega/\omega_0$  была оценена величина  $A_{hf}$  (величина  $g$  принималась равной 1.07 [8]). Величины  $A_{hf}/2\pi$  для всех исследованных образцов оказались примерно одинаковыми и составляют  $\approx 3 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$ . Следует отметить, что данное значение  $A_{hf}/2\pi$  примерно в 20 раз меньше частоты осцилляций спина мюона, обнаруженной ранее в эксперименте с образцом кремния собственной проводимости в нулевом внешнем магнитном поле при 6 К [18]. Наблюдение осцилляций спина мюона в нулевом внешнем магнитном поле является наиболее надежным и прямым способом определения  $A_{hf}$ , однако, к сожалению, результаты работы [18] не были подтверждены повторными экспериментами. Причина такого значительного расхождения наших оценок константы сверхтонкого взаимодействия и результатов [18] пока не ясна.

В предыдущей работе [13] мы показали, что релаксация спина мюона в кремнии обусловлена спин-решеточной релаксацией магнитного момента акцепторного центра. Температурные зависимости спин-решеточной релаксации вида  $T^q$  ( $1 \leq q \leq 9$ )

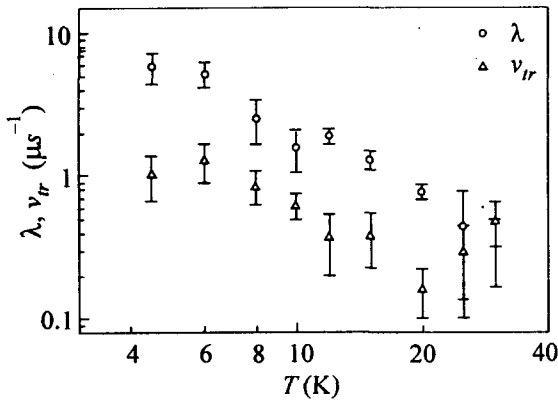


Рис.2. Температурные зависимости скорости релаксации  $\lambda$  спина мюона в парамагнитном состоянии акцепторного центра и скорости  $\nu_{tr}$  перехода акцепторного центра из парамагнитного в диамагнитное состояние

наблюдались в различных материалах методом ЭПР (см., например, [19]). Нам известна лишь одна теоретическая работа [20], где изучалась температурная зависимость скорости спин-решеточной релаксации магнитного момента акцепторного центра в идеальном кристалле кремния. Согласно [20], в диапазоне температур 10 – 100 К основной вклад в спин-решеточную релаксацию дает рамановское рассеяние фононов, и скорость релаксации зависит от температуры как  $T^5$ .

Настоящие результаты по температурной зависимости скорости релаксации спина мюона в кремнии описывались зависимостью (2) в предположении, что скорость релаксации магнитного момента акцепторного центра зависит от температуры как

$$\nu(T) = C \cdot T^5. \quad (3)$$

При обработке экспериментальных данных принималось, что  $j = 3/2$  и  $ACq/2\pi = 3 \cdot 10^6 \text{ с}^{\text{лк}}$ . Полученные значения параметров  $C$  и  $q$  для различных образцов приведены в таблице. Следует отметить, что в отличие от значений параметра  $C$ , величина  $q$  практически не зависит от  $ACq$ . Как можно видеть из таблицы, значение показателя степенной зависимости  $q$  находится в пределах от 2 до 3 для различных образцов. Таким образом, температурные зависимости скорости релаксации магнитного момента акцепторного центра, полученные в настоящей работе, существенно отличны от ожидаемой для идеального кристалла зависимости  $T^5$  [20]. Расхождение экспериментальных результатов и теоретических предсказаний может быть обусловлено тем фактом, что в расчетах [20] не учитывалось время жизни фононов, в то время как ниже температуры Дебая время жизни фононов меняется как  $1/T^2$ , а в ряде случаев даже сильнее [21]. Ослабление температурной зависимости (уменьшение параметра  $q$ ) при концентрации примеси выше  $\sim 10^{16} \text{ см}^{-3}$  может быть обусловлено изменениями фононного спектра, вызванными деформацией кристалла примесными атомами [22].

Сводная таблица параметров  $C$  и  $q$  для различных акцепторных центров ( $n$  – концентрация примеси)

	Si : Al	Si : Al	Si : P	Si : P	Si : P
$n, \text{ см}^{-3}$	$2 \cdot 10^{14}$	$2.4 \cdot 10^{18}$	$3.2 \cdot 10^{12}$	$2.3 \cdot 10^{15}$	$4.5 \cdot 10^{18}$
$C \cdot 10^{-7}, \text{ с}^{-1}$	$0.2 \pm 0.1$	$7.3 \pm 1.7$	$0.27 \pm 0.09$	$0.45 \pm 0.16$	$22.0 \pm 11.0$
$q$	$3.10 \pm 0.2$	$2.1 \pm 0.1$	$3.1 \pm 0.1$	$2.9 \pm 0.10$	$1.8 \pm 0.2$
$\nu (T = 4 \text{ К}), \text{ с}^{-1}$	$1.5 \cdot 10^8$	$1.3 \cdot 10^9$	$2.0 \cdot 10^8$	$2.5 \cdot 10^8$	$2.6 \cdot 10^9$

В последней строке таблицы представлены значения  $\nu$  при 4 К. Данные значения скорости релаксации магнитного момента акцепторного центра не противоречат результатам ЭПР экспериментов в образцах кремния в условиях одноосного сжатия [5–7], однако данные ЭПР по скорости релаксации магнитного момента мелких акцепторов для недеформированных образцов кремния отсутствуют.

Ионизация акцептора при  $T \lesssim 30$  К (см. рис.2) может быть обусловлена захватом электрона из зоны проводимости или взаимодействием акцептора с ближайшей донорной примесью, в результате чего оба примесных центра переходят из нейтрального в ионизованное состояние ( $A^0 D^0 \rightarrow A^- D^+$ ) [23]. Из ЭПР исследований [24] следует, что кремний  $n$ -типа при концентрации примеси  $\sim 3 \cdot 10^{18}$  см $^{-3}$  становится вырожденным полупроводником (в спектре ЭПР наблюдается только одна линия, обусловленная электронами зоны проводимости). В случае вырожденного  $n$ -типа кремния оба механизма ионизации могут быть рассмотрены как захват акцептором электрона из зоны проводимости. Соответственно, скорость захвата электрона нейтральным акцептором определяется как (см., например, [25])  $\nu_{tr} = \beta n_e$ , где  $\beta$  – коэффициент захвата,  $n_e$  – концентрация свободных электронов. Принимая  $n_e = n_D = 4.5 \cdot 10^{18}$  см $^{-3}$ , по значениям  $\nu_{tr}$ , приведенным на рис.2, находим, что величина  $\beta(\text{Al}^0)$  в диапазонах температур  $4.5 \leq T \leq 10$  К и  $12 \leq T \leq 30$  К примерно равна  $2 \cdot 10^{-13}$  см $^3 \cdot \text{с}^{-1}$  и  $7 \cdot 10^{-14}$  см $^3 \cdot \text{с}^{-1}$ , соответственно. Нам известна лишь одна работа [26], где определенная методом фотовозбуждения величина  $\beta(\text{Al}^0)$  составила  $4 \cdot 10^{-8}$  см $^3 \cdot \text{с}^{-1}$ . Однако необходимо отметить (см., например, [27]), что имеет место значительный (до 5 порядков) разброс экспериментальных данных по коэффициенту захвата электронов нейтральными акцепторами (В, In, Ga) в кремнии, причем значения  $\beta$ , полученные в [26], систематически превышают данные измерений другими методами. Полученная нами оценка  $\beta(\text{Al}^0)$  при  $T = 30$  К находится в пределах значений  $\beta(\text{In}^0) = 8 \cdot 10^{-15}$  см $^3 \cdot \text{с}^{-1}$  и  $\beta(\text{In}^0) = 2 \cdot 10^{-12}$  см $^3 \cdot \text{с}^{-1}$ , определенных методом релаксации фотопроводимости в работах [25] и [28], соответственно.

В заключение отметим, что на основе настоящих экспериментальных данных и аналитических выражений для скорости релаксации и сдвига частоты прецессии спина мюона в атоме с  $j = 3/2$  [15] получена оценка величины константы сверхтонкого взаимодействия магнитных моментов мюона и электронной оболочки мюонного атома  $\mu\text{Al}$  и определен вид температурной зависимости скорости релаксации магнитного момента мелкого акцепторного центра в недеформированном образце кремния. Также получена оценка для коэффициента захвата электронов нейтральным атомом алюминия в кремнии.

Авторы выражают благодарность дирекции института Пауля-Шеррера (Швейцария) за предоставление возможности проведения настоящих измерений. Частичное финансирование настоящих исследований осуществлялось Федеральным министерством по образованию и научным исследованиям Германии (Bundesministerium für Bildung und Forschung), контракты 03-MA5ST1 и 03-MA5ST2.

- 
1. G.D.Watkins, ФТТ **41**, 826 (1999).
  2. A.Baldereschi and N.O.Lipari, Phys. Rev. **B8**, 2697 (1973).
  3. И.А.Меркулов и А.В.Родина, ФТП **28**, 321 (1994).
  4. А.В.Мальшев, И.А.Меркулов, А.В.Родина, ФТП **30**, 159 (1996).
  5. G.W.Ludwig and H.H.Woodbury, Bull. Am. Phys. Soc. **6**, 118 (1961).
  6. G.Feher, J.C.Hensel, and E.A.Gere, Phys. Rev. Lett. **5**, 309 (1960).

7. Б.Г.Журкин, Н.А.Пенин, Н.Н.Сибельдин, ФТП **2**, 827 (1968).
8. H.Neubrand, Phys. Stat. Sol. (b)**86**, 269 (1978).
9. В.Н.Горелкин и В.П.Смилга, ЖЭТФ **66**, 1201 (1974).
10. В.Н.Горелкин, В.Г.Гребинник, К.И.Грицай и др., Ядерная физика **56**(10), 29 (1993).
11. W.Beez, T.Grund, M.Hampele et al., *PSI Annual Report F1, Annex I, Villigen, Switzerland: PSI, 1994*, p.125.
12. В.Н.Горелкин, В.Г.Гребинник, К.И.Грицай и др., Письма в ЖЭТФ **63**, 539 (1996).
13. Т.Н.Мамедов, В.Н.Дугинов, Д.Герлах и др., Письма в ЖЭТФ **68**, 61 (1998).
14. Г.Л.Бир и Г.Е.Пикус, *Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках*, М.: Наука, 1972.
15. V.N.Gorelkin and A.S.Baturin, in abstracts of the 8<sup>th</sup> *International Conference on Muon Spin Rotation, Relaxation and Resonance, August 30 – September 3 1999, Les Diablerets, Switzerland*, p.II-10. (Труды конференции в печати: Physica B.)
16. В.П.Смилга и Ю.М.Белоусов, *Мюонный метод исследования вещества*, М.: Наука, 1991.
17. R.Scheuermann, J.Schmidl, A.Seeger et al., *Hyperfine Interact.* **106**, 295 (1997).
18. М.Коч, К.Мажер, J.Мажор et al., *Hyperfine Interact.* **65**, 1039 (1990).
19. С.А.Альшутлер и Б.М.Козырев, *Электронный парамагнитный резонанс соединений элементов промежуточных групп*, М.: Наука, 1972.
20. Y.Yafet, J. Phys. Chem. Solids **26**, 647 (1965).
21. И.Я.Померанчук, *Собрание научных трудов*, т.1, М.: Наука, 1972.
22. Ч.Киттель, *Введение в физику твердого тела*, М.: Наука, 1978.
23. R.C.Enck and A.Honig, Phys. Rev. **177**, 1182 (1969).
24. G.Feher, Phys. Rev. **114**, 1219 (1959).
25. Я.Е.Покровский, К.И.Свистунова, ФТТ **7**, 1837 (1965).
26. M.Loewenstein and A.Honig, Phys. Rev. **144**, 781 (1966).
27. А.Милнс, *Примеси с глубокими уровнями в полупроводниках*, М.: Мир, 1977.
28. Я.Е.Покровский, К.И.Свистунова, ФТТ **5**, 1880 (1963).