

P14-2002-167

Т. Н. Мамедов, Д. Г. Андрианов¹, Д. Герлах²,
В. Н. Горелкин³, А. В. Стойков, У. Циммерманн²

**ОСОБЕННОСТИ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ
АКЦЕПТОРНОЙ ПРИМЕСИ μAl
В СЛАБО- И СИЛЬНОЛЕГИРОВАННЫХ
ОБРАЗЦАХ КРЕМНИЯ**

Направлено в журнал «Письма в ЖЭТФ»

¹Государственный научно-исследовательский и проектный институт
редкометаллической промышленности «Гиредмет», Москва

²Paul Scherrer Institut, CH-5232 Villigen PSI, Switzerland

³Московский физико-технический институт, 141700

г. Долгопрудный, Московская обл.

В последние годы интерес к исследованию парамагнитных центров в полупроводниках существенно возрос в связи с широко обсуждаемой в научной литературе возможностью создания на их основе модели квантового компьютера [1]. В свете данной проблемы крайне важны детальные данные об электронной структуре различных парамагнитных центров и об их взаимодействиях в полупроводниках. Одним из типов парамагнитных центров в полупроводниках является мелкий акцепторный центр (АЦ). Однако, в отличие от доноров, мелкие акцепторные центры в полупроводниках со структурой алмаза (алмаз, кремний, германий) изучены недостаточно [2].

Исследования [3–6] показывают, что использование пучков поляризованных отрицательных мюонов позволяет получать обширную информацию о взаимодействиях АЦ в алмазоподобных полупроводниках, которая недоступна традиционным методам (ЭПР, ДЭПР, ЯМР).

Возможность применения отрицательных мюонов для изучения АЦ в полупроводниках основана на том, что при захвате мюона атомом среды образуется мюонный атом, который моделирует акцепторную примесь. Например, в кремнии мюонный атом является аналогом атома алюминия – μAl . При этом величина $P(t)$, зависимость от времени поляризации мюона на 1s-уровне атома μAl , определяется состоянием электронной оболочки данного мюонного атома (АЦ) и его взаимодействиями со средой. АЦ в полупроводнике может находиться как в ионизованном (диамагнитном), так и в нейтральном (парамагнитном) состоянии. В предположении, что μAl образуется в нейтральном состоянии μAl^0 и разрешен переход в диамагнитное состояние μAl^- , функция $P(t)$ во внешнем поперечном спине мюона магнитном поле имеет вид [4]:

$$P(t) = P_0 [C_1 e^{-(\lambda+\nu)t} \cos(\omega t + \phi) + C_2 \cos(\omega_d t + \phi_d)] , \quad (1)$$

где P_0 – поляризация мюона на 1s-уровне при $t = 0$; λ – скорость релаксации спина мюона в парамагнитном состоянии АЦ; ν – скорость ионизации АЦ; ω , ϕ (ω_d , ϕ_d) – частота и начальная фаза прецессии для релаксирующего и нерелаксирующего (диамагнитного) компонентов поляризации; C_1 и C_2 – относительные амплитуды релаксирующего и нерелаксирующего компонентов, зависящие от λ , ν и $\delta = \omega - \omega_d$.

Экспериментально измеряемые величины λ и ω зависят от таких параметров АЦ, как скорость релаксации его магнитного момента (ν) и константа сверхтонкого взаимодействия (A). Величина константы сверхтонкого взаимодействия определяется распределением плотности волновой

функции дырки, связанной на акцепторе. В работе [7], в приближении изотропного сверхтонкого взаимодействия, были установлены аналитические соотношения между параметрами поляризации спина мюона и теми, которые характеризуют взаимодействия АЦ в полупроводнике:

$$\frac{\omega - \omega_d}{\omega_d} = -\frac{g\mu_B}{2\mu_B^\mu} \cdot \frac{J(J+1)A}{3k_B T}, \quad (2)$$

$$\lambda = \frac{J(J+1)}{3} \left(\frac{(A/\hbar)^2}{\nu} + \frac{(A/\hbar)^2 \nu}{\nu^2 + \omega_c^2} \right), \quad (3)$$

где $\hbar = h/2\pi$, h – постоянная Планка; k_B – постоянная Больцмана; μ_B и μ_B^μ – магнетон Бора для электрона и мюона соответственно; g – g-фактор для АЦ; $\omega_c = g\mu_B B/\hbar$ – угловая частота прецессии магнитного момента электронной оболочки АЦ в магнитном поле \mathbf{B} ; T – температура. Для мелкого АЦ в кремнии $J = 3/2$ [8], $g = -1.07$ [9].

В предыдущих исследованиях [3, 6] нами были получены указания на существование отклонения температурной зависимости сдвига частоты прецессии спина мюона от $1/T$ -закона Кюри для μAl -акцептора в Si с примесью фосфора (Si:P, [P] = $1.6 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$) и в Si с примесью бора (Si:B, [B] = $4.1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$). В последнем случае концентрация примеси близка к ее критическому значению n_c , соответствующему переходу полупроводник-металл (переход Мотта).

Целью настоящей работы было более детальное изучение взаимодействий АЦ в перечисленных выше образцах.

Измерения были выполнены на спектрометре GPD [10], расположенном на мюонном канале μE1 ускорителя протонов Института Пауля Шеррера (PSI, Швейцария). Исследуемые образцы, вырезанные из монокристаллов кремния, имели форму дисков (диаметром ~ 20 мм и высотой ~ 8 мм) и устанавливались так, чтобы ось диска совпадала с осью пучка мюонов. Температура образцов стабилизировалась в диапазоне 4 – 300 К с точностью 0.1 К. Процедура обработки аппаратурных спектров подробно описана в [4, 5].

Результаты фитирования экспериментальных данных функцией (1) соответствуют тому, что для образца с примесью бора во всем диапазоне температур нерелаксирующий компонент поляризации отсутствует (т.е. $C_2 = 0$ и $\nu_1 = 0$). В случае кремния с примесью фосфора при $12.5 \text{ К} \leq T \leq 50 \text{ К}$ наблюдается только релаксирующий компонент, а при $T > 52 \text{ К}$ в спектре присутствует лишь нерелаксирующий компонент поляризации

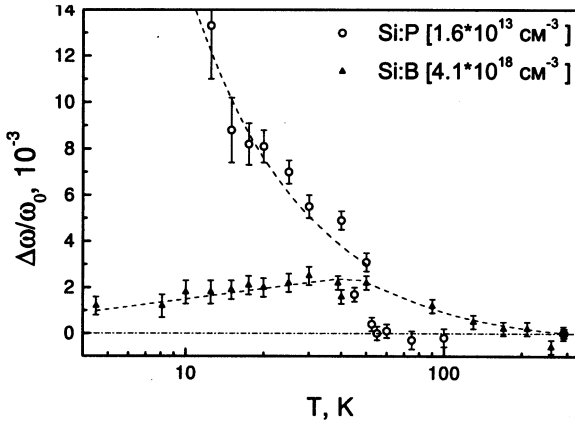


Рис. 1: Температурные зависимости сдвига частоты прецессии спина мюона для образцов кремния с примесью бора и фосфора. Пунктирные линии проведены для наглядности

мюона ($C_1 = 0$). Соответственно, в Si:B во всем диапазоне температур АЦ находится в парамагнитном (нейтральном) состоянии. В Si:P АЦ является парамагнитным при $T \lesssim 50$ К и диамагнитным при $T > 52$ К.

На рис. 1 для данных образцов представлены температурные зависимости сдвига частоты прецессии спина мюона $\Delta\omega = (\omega - \omega_0)$, где ω_0 – частота прецессии, измеренная для каждого из образцов при $T_0 = 290$ К. Для образца Si:P при $T < 50$ К и Si:B при $T > 50$ К пунктирные линии на рис. 1 представляют зависимости вида $1/T$ и $(1/T - 1/T_0)$, соответственно. Как видно из рисунка, зависимость $\Delta\omega/\omega_0 = f(T)$ определяется $1/T$ -законом Кюри при $T < 50$ К в Si:P и при $T > 50$ К в Si:B. В последнем случае экспериментальные данные лучше аппроксимируются зависимостью вида $\Delta\omega/\omega_0 \sim (1/T - 1/T_0)$. Это соответствует тому, что в Si:B акцепторный центр при комнатной температуре неионизован ($\omega_0 \neq \omega_d$). В результате фитирования настоящих экспериментальных данных в указанных температурных диапазонах зависимостью (2) была определена величина константы сверхтонкого взаимодействия (A/h) для μ Al-акцептора, которая составила (23 ± 2) и (20.0 ± 2.3) МГц для Si:P и Si:B соответственно. Полученные значения в пределах экспериментальных ошибок согласуются с данными работы [6].

Однако в случае кремния с примесью бора в диапазоне температур $4.5 \text{ К} \leq T \lesssim 40 \text{ К}$ наблюдается сильное отклонение зависимости

$\Delta\omega/\omega_0 = f(T)$ от $1/T$ -закона: при $T \approx 50$ К рост сдвига частоты с уменьшением температуры прекращается и при $T < 50$ К, по-видимому, имеет место даже некоторое уменьшение $\Delta\omega/\omega_0$ с понижением T . В этом образце температурная зависимость скорости релаксации спина мюона также существенно отличается от зависимости, полученной для образца кремния с примесью фосфора (см. рис. 2). В последнем случае экспериментальные данные $\lambda(T)$ согласуются с полученными ранее (см. [6]) для образцов кремния с концентрациями примесей менее $\sim 2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$.

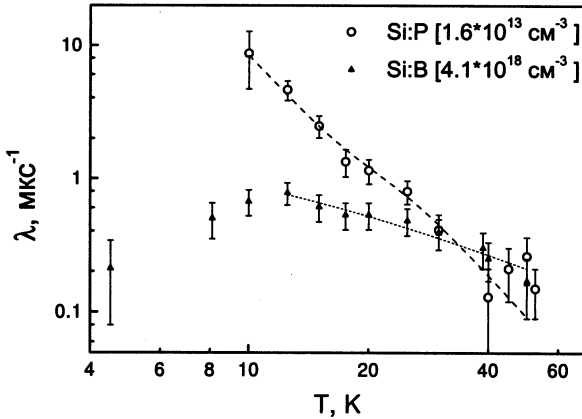


Рис. 2: Температурные зависимости скорости релаксации спина мюона для образцов кремния с примесью фосфора и бора. Пунктирные линии – результат фитирования зависимостью (3)

Данные, приведенные на рис. 2, были аппроксимированы зависимостью (3) в предположении, что скорость релаксации магнитного момента акцептора зависит от температуры степенным образом ($\nu = C \cdot T^q$): а) для Si:P при $A/h = 23$ МГц; б) для Si:B при $A/h = 20$ МГц и $T > 12$ К. Полученные в результате фитирования значения параметров C и q составили $C = (1.9 \pm 1.2) \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$, $q = 3.2 \pm 0.3$ для Si:P и $C = (2.4 \pm 0.7) \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$, $q = 1.1 \pm 0.1$ для Si:B. Следует отметить, что в случае Si:B абсолютное значение параметра C может быть неточным, поскольку при фитировании экспериментальных данных было использовано значение A/h , следующее из данных по $\Delta\omega/\omega_0$ при $T \geq 50$ К.

Близкий к трем показатель степени в температурной зависимости ν свидетельствует о фоновом механизме релаксации магнитного момента АЦ в кремнии с примесью фосфора, в то время как в сильнолегирован-

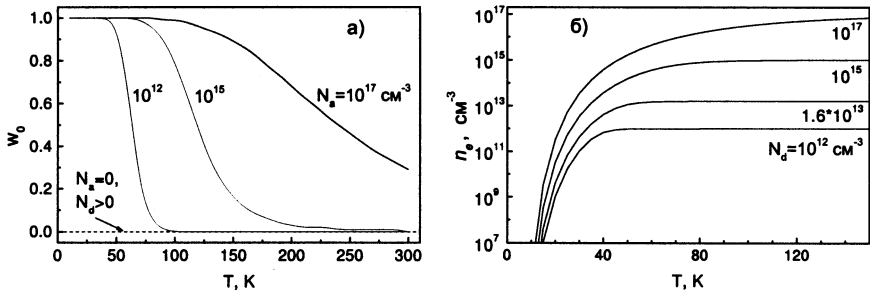


Рис. 3: а) Вероятность W_0 нахождения АЦ μAl в неионизованном (парамагнитном) состоянии при термодинамическом равновесии в кремнии с различными концентрациями донорной N_d и акцепторной N_a примесей; б) температурная зависимость концентрации электронов проводимости n_e в кремнии при разных концентрациях N_d доноров (фосфор). Расчеты W_0 и n_e выполнены по известным соотношениям (см., например, [12])

ном кремнии с примесью бора преобладает механизм релаксации за счет спин-обменного рассеяния дырок на акцепторе (см. также [6]).

Полученные данные по $\Delta\omega/\omega_0$ свидетельствуют о том, что в кремнии с примесью фосфора при $T > 50$ К имеет место ионизация АЦ. В n-типа кремнии парамагнитное состояние АЦ – μAl^0 , в котором данный центр образуется за времена $t < 10^{-8}$ с [11], не является термодинамически равновесным (см. рис. 3 а, где представлены результаты расчета вероятности W_0 нахождения акцепторного центра μAl в неионизованном состоянии при термодинамическом равновесии в n- и р-типа кремнии). В принципе ионизация акцептора в n-типа кремнии может быть обусловлена следующими процессами: 1) захватом электрона из зоны проводимости; 2) тепловой ионизацией, т.е. дырка (h^+) благодаря взаимодействию с фононами приобретает энергию и покидает примесный центр. Как следует из теоретических расчетов [13], скорость тепловой ионизация примесных центров возрастает с увеличением температуры как $\nu_i \sim \exp(-E_i/k_B T)$, где E_i – энергия ионизации примеси. Поскольку скорость захвата на АЦ электрона из зоны проводимости пропорциональна концентрации электронов n_e [14], то $\nu_i \sim n_e \sim \exp(-E_i/2k_B T)$ (расчетная зависимость $n_e = f(T)$ в кремнии с примесью фосфора представлена на рис. 3 б). Однако отсутствие надежных данных о сечениях захвата электронов проводимости на нейтральный АЦ (см. [14]) и данных о константе взаи-

модействия АЦ с фононами не позволяет определить вклад названных процессов в наблюдаемые зависимости $\Delta\omega/\omega_0 = f(T)$. По-видимому, нельзя также исключить и возможность того, что в п-типа кремнии атом μAl может формироваться в ионизованном состоянии, в случае когда концентрация свободных электронов в образце превышает концентрацию дырок, образующихся вблизи мюонного атома в процессе его формирования.

Исследование зависимости температуры T_i , при которой имеет место излом на кривых $\Delta\omega/\omega_0 = f(T)$, от концентрации доноров в кремнии позволит выяснить роль процесса тепловой ионизации. Скорость тепловой ионизации АЦ при данной температуре практически не должна меняться в широком интервале изменения концентрации примеси, тогда как вклады двух других механизмов ионизации АЦ от концентрации зависят.

В Si с концентрацией примеси бора $4.1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ наблюдаемые изломы зависимостей $\Delta\omega/\omega_0 = f(T)$ и $\lambda = f(T)$ могут быть обусловлены взаимодействием μAl -акцептора с примесными центрами бора. Данное взаимодействие, по-видимому, становится эффективным лишь при $T \lesssim 50 \text{ K}$.

Проблема межпримесных взаимодействий в неупорядоченных системах является интенсивно изучаемой в последние годы (см. [15]). Кремний, в котором переход полупроводник – металл (переход Мотта) происходит в результате взаимодействия случайным образом распределенных в пространстве примесных центров, является одним из наиболее подходящих объектов для изучения данного явления.

Как известно [16, 17], в сильнолегированном р(п)-типа кремнии межпримесное обменное взаимодействие приводит к уменьшению макроскопической магнитной восприимчивости χ образца: $\chi \sim T^{-\alpha}$, где показатель степени α меньше единицы и уменьшается при увеличении концентрации примеси, т.е. имеет место существенное отклонение температурной зависимости χ от закона Кюри. Согласно [16] в кремнии с примесью бора $\alpha = (0.3 - 0.4)$ при концентрации бора $[\text{B}] \approx 4 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. В принципе из (2) следует ожидать, что $\Delta\omega/\omega_0 \sim \chi$. При этом очевидно, что настоящие экспериментальные данные по температурной зависимости сдвига частоты прецессии спина мюона в Si:B при $T \lesssim 50 \text{ K}$ (см. рис.1) не могут быть объяснены на основе макроскопической магнитной восприимчивости данного образца, так как даже при $\alpha = 0.3$ должен наблюдаться двухкратный рост $\Delta\omega/\omega_0$ с понижением температуры от 50 K до 5 K. Однако, в отличие от макроскопической величины χ , сдвиг частоты $\Delta\omega/\omega_0$ определяется локальной восприимчивостью АЦ.

Соответственно, различное поведение $\Delta\omega/\omega_0$ и χ может означать отличие локальной и макроскопической магнитной восприимчивостей в неупорядоченных системах вблизи перехода Мотта.

Таким образом, обнаружено, что поведение АЦ μAl в Si существенно зависит от типа и концентрации примеси в образце: в слабелегированном n-типа кремнии АЦ ионизован при $T > 50$ К, в то время как в образце с высокой концентрацией р-типа примеси ($[B] = 4.1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$) АЦ находится в парамагнитном (нейтральном) состоянии практически до комнатных температур. При $T \lesssim 50$ К в р-типа кремнии наблюдается уменьшение атомарной восприимчивости АЦ, что свидетельствует о возникновении межпримесного магнитного взаимодействия. Полученные результаты, по-видимому, также указывают на отличие локальной восприимчивости АЦ от макроскопической магнитной восприимчивости образца. Дальнейшие исследования позволят определить механизм ионизации АЦ в n-типа кремнии и получить более детальную информацию о межпримесных взаимодействиях в р-типа кремнии.

Авторы выражают благодарность дирекции Института Пауля Шеррера (Швейцария) за предоставление возможности проведения настоящих измерений.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, проект 02-02-16881.

Цитируемая литература

- [1] С.Я.Килин, УФН **169**, 507 (1999).
- [2] G.D.Watkins, ФТТ **41**, 826 (1999).
- [3] В.Н.Горелкин, В.Г.Гребинник, К.И.Грицай и др., Письма в ЖЭТФ **63**, 539 (1996).
- [4] T.N.Mamedov, I.L.Chaplygin, V.N.Duginov et.al., J.Phys.: Condens. Matter **11**, 2849 (1999).
- [5] Т.Н.Мамедов, Д.Г.Андрианов, Д.Герлах и др., ЖЭТФ **119**, 1159 (2001).
- [6] Т.Н.Мамедов, Д.Г.Андрианов, Д.Герлах и др., Письма в ЖЭТФ **73**, 759 (2001).

- [7] V.N.Gorelkin, T.N.Mamedov, A.S.Baturin, *Physica B* **289-290**, 585 (2000).
- [8] Г.Л.Бир, Г.Е.Пикус, *Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках*, М.: Наука, 1972.
- [9] H.Neubrand, *Phys.Stat.Sol. (b)* **86**, 269 (1978).
- [10] R.Abel, C.Baines, X.Donath et.al., *Нур. Int.* **87**, 1105 (1994).
- [11] V.N.Gorelkin, T.N.Mamedov, D.V.Rubtsov, *Нур. Int.* **С1**, 191 (1996).
- [12] В.Л.Бонч-Бруевич, С.Г.Калашников, *Физика полупроводников*, М.: Наука, 1990.
- [13] R.Kubo, *Phys.Rev.* **86**, 929 (1952).
- [14] А.Милнс, *Примеси с глубокими уровнями в полупроводниках*, М.: Мир, 1977.
- [15] D.Belitz, T.L.Kirpatrik, *Rev. Mod. Phys.* **66(2)**, 261 (1994).
- [16] M.P.Sarachik, D.R.He, W.Li et.al., *Phys.Rev. B* **31**, 1469 (1985).
- [17] A. Roy, M. Turner, M. P. Sarachik, *Phys.Rev.B* **37**, 5522 (1988),
A. Roy, M. P. Sarachik, *Phys.Rev.B* **37**, 5531 (1988).

Получено 11 июля 2002 г.

Мамедов Т. Н. и др.

P14-2002-167

Особенности взаимодействия акцепторной примеси μAl в слабо- и сильнолегированных образцах кремния

Настоящая работа посвящена изучению взаимодействий акцепторной примеси алюминия в кремнии с помощью поляризованных отрицательных мюонов.

Проведено исследование температурной зависимости поляризации отрицательных мюонов в образцах кристаллического кремния с примесью фосфора ($1,6 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$) и бора ($4,1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$). Измерения были выполнены в поперечном спину мюона магнитном поле 0,41 Тл в диапазоне температур 4–300 К.

Полученные результаты свидетельствуют о том, что в кремнии n-типа с примесью фосфора акцепторный центр μAl ионизован при $T > 50$ К. В кремнии с примесью бора обнаружено существенное отклонение температурной зависимости сдвига частоты прецессии спина мюона от $1/T$ -закона Кюри при $T \leq 50$ К. Анализируются взаимодействия μAl -акцептора, которые могут приводить к наблюдаемым эффектам.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем им. В. П. Дзелепова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2002

Перевод авторов

Mamedov T. N. et al.

P14-2002-167

Interactions of the μAl Acceptor Impurity in Lightly and Heavily-Doped Silicon

The work is devoted to investigation of the interactions of the aluminum acceptor impurity in silicon by means of polarized negative muons.

The behavior of the negative muon polarization is studied for crystalline silicon samples with phosphorus ($1,6 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$) and boron ($4,1 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) impurities. The measurements were carried out in a magnetic field of 0.41 T transverse to the direction of the muon spin in the temperature range 4–300 K.

The obtained results evidence that in n-type phosphorus-doped silicon the μAl acceptor is ionized at $T > 50$ K. In silicon with boron impurity a substantial deviation of the temperature dependence of the muon spin frequency shift from the $1/T$ Curie law is found at $T \leq 50$ K. The interactions of the μAl acceptor which may be the cause for the observed effects are analyzed.

The investigation has been performed at the Dzhelapov Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2002

Редактор *М. И. Зарубина*
Макет *Н. А. Киселевой*

ЛР № 020579 от 23.06.97.

Подписано в печать 16.08.2002.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 0,5. Уч.-изд. л. 0,67. Тираж 295 экз. Заказ № 53480.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.