



ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P14-2000-58

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

Направлено в «Письма в ЖЭТФ»

2000

Т.Н.Мамедов, К.И.Грицай, А.В.Стойков

*Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, Россия*

Д.Г.Анрианов

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

Д.Герлах, У.Циммерман

*Институт П.Шеррера, Швейцария*

В.Н.Горелкин

*Московский физико-технический институт, Долгопрудный, Россия*

О.Корманн, Я.Майор

*Институт М.Планка, Штутгарт, Германия*

Я.Майор, М.Шевчик

*Штутгартский университет, Институт теоретической и прикладной физики, Штутгарт, Германия*

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 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 незагнущаяся 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 В.Н.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 ( $A_{\text{hf}}$ ), сдвиг частоты прецессии ( $\Delta\omega$ ) и скорость релаксации спина мюона ( $\lambda$ ) зависят от  $A_{\text{hf}}$  и  $\nu$  следующим образом [15]:

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

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

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:  $3, 2 \cdot 10^{12}$ ,  $2, 3 \cdot 10^{15}$ ,  $4, 5 \cdot 10^{18}$  см $^{-3}$  и два образца  $p$ -типа с примесью алюминия:  $2 \cdot 10^{14}$ ,  $2, 4 \cdot 10^{18}$  см $^{-3}$ ).

Измерения были выполнены на установке “Stuttgart  $\mu$ SR Spectrometer” [17], расположенной на мюонном канале  $\mu E4$  ускорителя протонов Института Пауля Шеррера (Швейцария). Поперечное спину внешнее магнитное поле, создаваемое кольцами Гельмгольца на образце, составляло 2000 гаусс. 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 – 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 релаксирующего компонента поляризации, а в случае наблюдения релаксирующего и нерелаксирующего компонентов также их относительные амплитуды и скорость ионизации акцепторного центра (переход  $\mu Al^0 \rightarrow \mu Al^-$ ).

Экспериментальные результаты по температурной зависимости скорости релаксации спина мюона для образцов кремния с примесью фосфора  $4, 5 \cdot 10^{18}$ ,  $2, 3 \cdot 10^{15}$  см $^{-3}$  и двух образцов с примесью алюминия представлены на рисунках 1б, 2а и 3а соответственно.

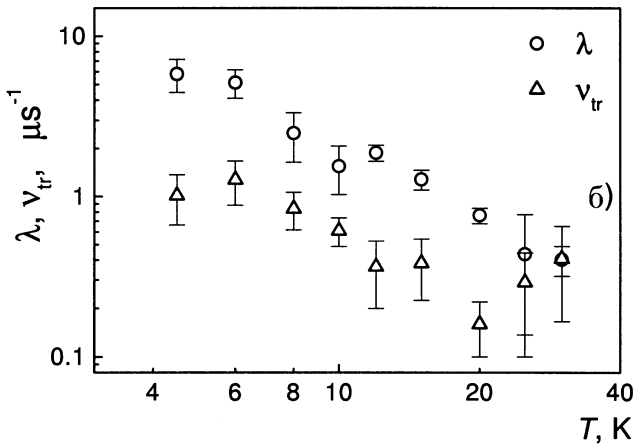
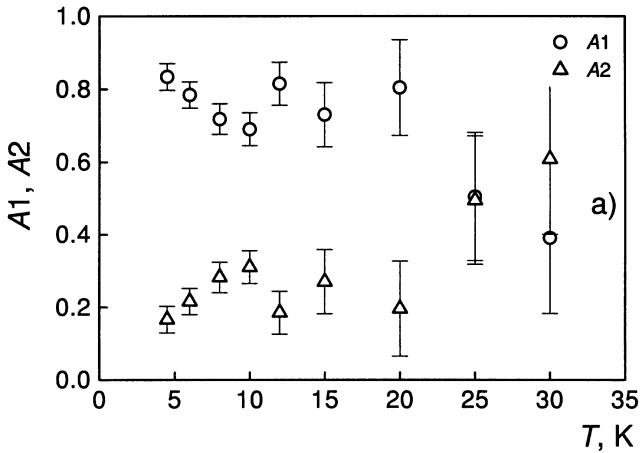


Рис. 1: Температурная зависимость относительных амплитуд релаксирующего ( $A1$ ) и нерелаксирующего ( $A2$ ) компонентов остаточной поляризации отрицательных мюонов в образце кремния с высокой концентрацией ( $4,5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ) примеси фосфора (а). Температурные зависимости скорости релаксации  $\lambda$  спина мюона в парамагнитном состоянии акцепторного центра и скорости  $\nu_{tr}$  перехода акцепторного центра из парамагнитного в диамагнитное состояние (б)

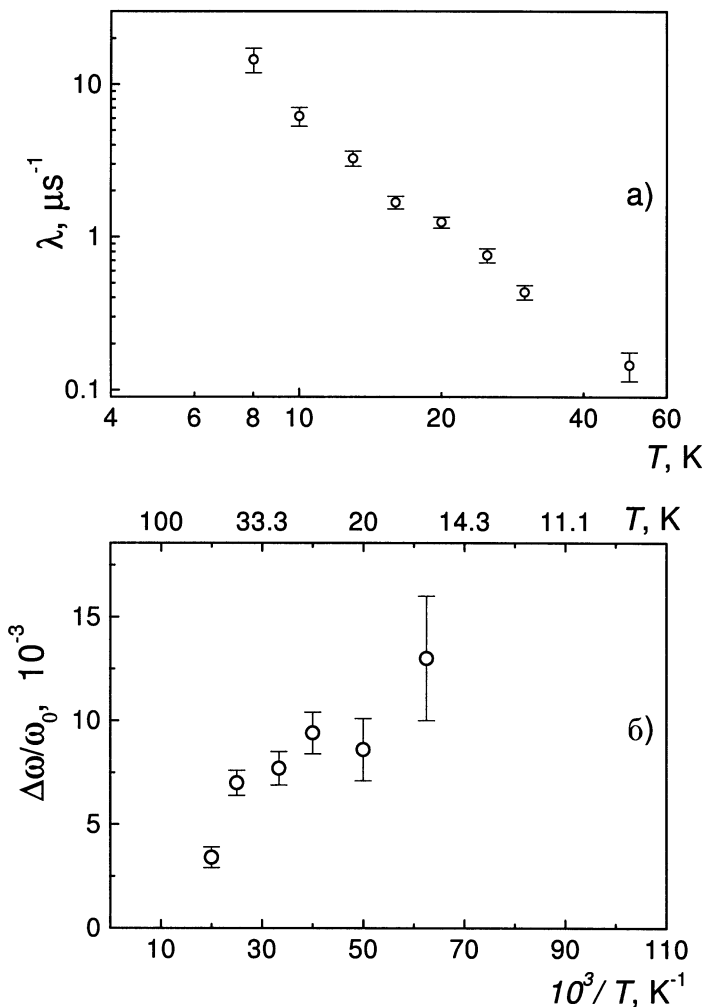


Рис. 2. Температурные зависимости скорости релаксации (а) и сдвига частоты прецессии спина мюона (б) для образца кремния с примесью фосфора ( $[P] = 2,3 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ )

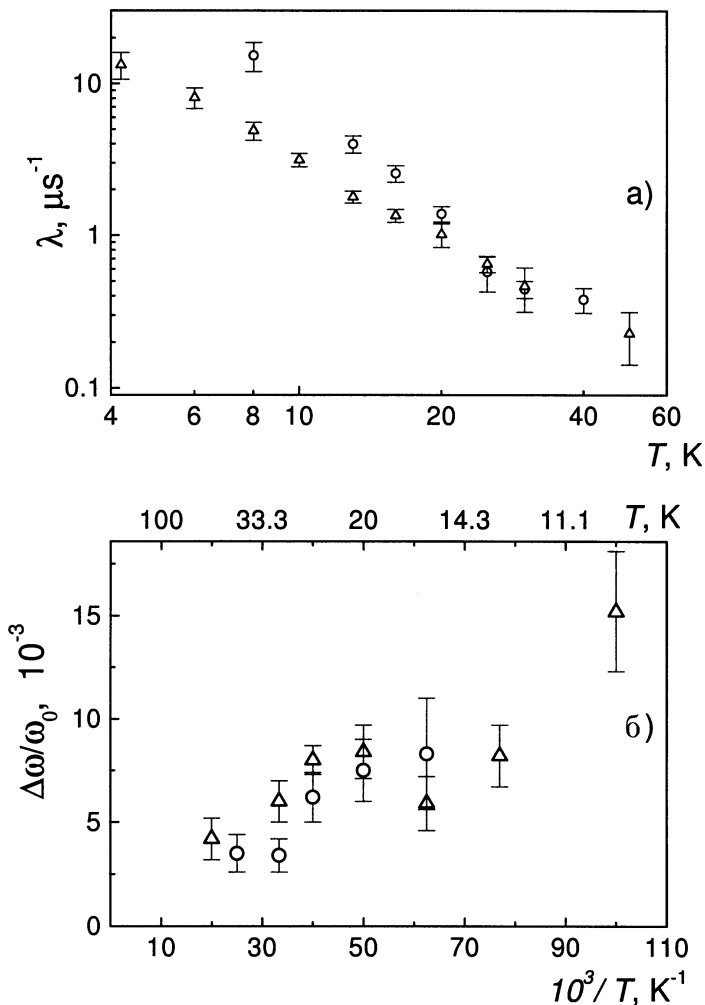


Рис. 3. Температурные зависимости скорости релаксации (а) и сдвига частоты прецессии спина мюона (б) для образцов кремния с различной концентрацией примеси алюминия ( $\circ$  :  $[\text{Al}] = 2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ ,  $\Delta$  :  $[\text{Al}] = 2,4 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ )

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  $\nu_{\text{tr}}$  – скорость ионизации акцепторного центра. Температурные зависимости относительных амплитуд релаксирующего и нерелаксирующего компонентов поляризации и скорости  $\nu_{\text{tr}}$  представлены на рис.1а,б соответственно. Для всех остальных исследованных образцов, в том числе и в случае высокой концентрации примеси алюминия ( $2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ), наблюдался только релаксирующий компонент 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.

Температурная зависимость сдвига частоты для всех исследованных образцов не противоречит  $1/T$  закону Кюри (см., например, рис.26 и 36). 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  $A_{\text{hf}}$  (величина  $g$  принималась равной 1,07 [8]). Величины  $A_{\text{hf}}/2\pi$  для всех исследованных образцов оказались примерно одинаковыми и составляют  $\approx 3 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$ . Следует отметить, что данное значение  $A_{\text{hf}}/2\pi$  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  $A_{\text{hf}}$ , 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  $T^q$  ( $1 \leq q \leq 9$ ) 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:

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

При фитировании экспериментальных данных принималось, что  $j = 3/2$  и  $A_{\text{hf}}/2\pi = 3 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$ . Полученные значения параметров  $C$  и  $q$  для различных образцов приведены в табл.1. Следует отметить, что в отличие от значений параметра  $C$ , величина  $q$  практически не зависит от  $A_{\text{hf}}$ . Зависимость  $q$  от логарифма концентрации примеси в образце представлена на рис.4. Как можно видеть из таблицы и рисунка, значение показателя  $q$  в степенной зависимости  $\nu(T)$  находится в пределах от двух до трех 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

Таблица 1. Значения параметров в зависимости ( $\nu(T) = C \cdot T^q$ ) скорости релаксации магнитного момента акцепторного центра, полученные в результате фитирования температурной зависимости скорости релаксации спина мюона ( $n$  – концентрация примеси)

	Si : Al	Si : Al	Si : P	Si : P	Si : P
$n, \text{ см}^{-3}$	$2 \cdot 10^{14}$	$2.4 \cdot 10^{18}$	$3.2 \cdot 10^{12}$	$2.3 \cdot 10^{15}$	$4.5 \cdot 10^{18}$
$C \cdot 10^{-7}, \text{ c}^{-1}$	$0.2 \pm 0.1$	$7.3 \pm 1.7$	$0.27 \pm 0.09$	$0.45 \pm 0.16$	$22 \pm 11$
$q$	$3.10 \pm 0.2$	$2.1 \pm 0.1$	$3.1 \pm 0.1$	$2.9 \pm 0.10$	$1.8 \pm 0.2$
$\nu$ (4 K), $\text{ c}^{-1}$	$1.5 \cdot 10^8$	$1.3 \cdot 10^9$	$2.0 \cdot 10^8$	$2.5 \cdot 10^8$	$2.6 \cdot 10^9$

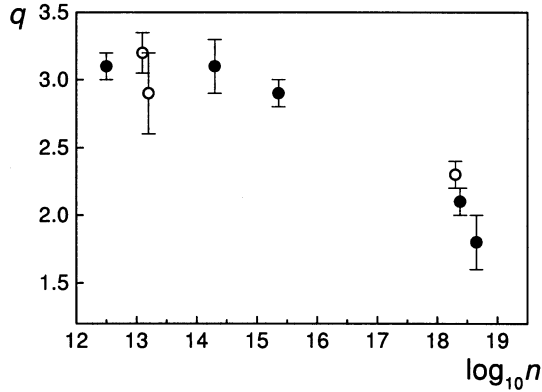


Рис. 4. Зависимость показателя степени  $q$  в температурной зависимости скорости релаксации магнитного момента акцепторного центра ( $\nu = C \cdot T^q$ ) от концентрации примеси  $n$  в образцах кремния n- и p-типа: ● – результаты настоящей работы, ○ – результаты работ [10, 12, 13]

$\sim 10^{18} \text{ см}^{-3}$  может быть обусловлено изменениями фононного спектра вызванными деформацией кристалла примесными атомами [22].

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, ЭПР-данные по скорости релаксации магнитного момента мелких акцепторов для недеформированных образцов кремния отсутствуют.

Ионизация акцептора при  $T \lesssim 30 \text{ К}$  (см. рис.1) 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  $\sim 3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$  становится вырожденным полупроводником (в спектре ЭПР наблюдается только одна линия, обусловленная электронами зоны проводимости). В случае вырожденного кремния n-типа оба механизма ионизации могут быть рассмотрены как захват акцептором электрона из зоны проводимости. Соответственно, скорость захвата электрона нейтральным акцепто-

ром определяется, как (см., например, [25]):  $\nu_{tr} = \beta n_e$ , где  $\beta$  – коэффициент захвата,  $n_e$  – концентрация свободных электронов. Принимая  $n_e = n_D = 4,5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ , по значениям  $\nu_{tr}$ , приведенным на рис.1, находим, что величина  $\beta(\text{Al}^0)$  примерно равна  $2 \cdot 10^{-13}$  и  $7 \cdot 10^{-14} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$  в диапазонах температур  $4,5 \leq T \leq 10 \text{ К}$  и  $12 \leq T \leq 30 \text{ К}$  соответственно. Нам известна лишь одна работа [26], где определенная методом фотовозбуждения величина  $\beta(\text{Al}^0)$  составила  $4 \cdot 10^{-8} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$ . 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  $T = 30 \text{ К}$  находится в пределах значений  $\beta(\text{In}^0) = 8 \cdot 10^{-15} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$  и  $\beta(\text{In}^0) = 2 \cdot 10^{-12} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$ , 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 впервые 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.

## Список литературы

- [1] G.D.Watkins, ФТТ, **41**, 826 (1999).
- [2] A.Baldereschi, N.O.Lipari, Phys. Rev. B, **8**, 2697 (1973).
- [3] И.А.Меркулов, А.В.Родина, ФТП, **28**, 321 (1994).

- [4] А.В.Малышев, И.А.Меркулов, А.В.Родина, ФТП, **30**, 159 (1996).
- [5] G.W.Ludwig, H.H.Woodbury, Bull. Am. Phys. Soc., **6**, 118 (1961).
- [6] G.Feher, J.C.Hensel, 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**, вып.10, 29 (1993).
- [11] W.Beez, T.Grund, M.Hampele et.al., PSI Annual Report F1, Annex I (Villigen, Switzerland: PSI), 125 (1994).
- [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, Г.Е.Пикус, *Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках*, М.: Наука, 1972.
- [15] V.N.Gorelkin, A.S.Baturin, in abstracts of the *8th 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, 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] M.Koch, K.Majer, J.Majer et.al, Hyperfine Interact., **65**, 1039 (1990).
- [19] С.А.Альтшулер, 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, A.Honig, Phys. Rev., **177**, 1182 (1969).
- [24] G.Feher, Phys.Rev., 114, n.5, 1219 (1959).
- [25] Я.Е.Покровский, К.И.Свистунова, ФТТ, **7**, 1837 (1965).
- [26] M.Loewenstein, 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).

Рукопись поступила в издательский отдел  
17 марта 2000 года.

Мамедов Т.Н. и др.

P14-2000-58

Исследование температурной зависимости скорости релаксации акцепторного центра в кремнии  $\mu^-$  SR-методом

Приведены результаты исследований температурной зависимости остаточной поляризации отрицательных мюонов в кристаллическом кремнии с примесью фосфора ( $3,2 \cdot 10^{12}$ ,  $2,3 \cdot 10^{15}$  и  $4,5 \cdot 10^{18}$   $\text{см}^{-3}$ ) и алюминия ( $2 \cdot 10^{14}$  и  $2,4 \cdot 10^{18}$   $\text{см}^{-3}$ ). Измерения были выполнены в поперечном спину мюона магнитном поле 2000 Гс в диапазоне температур 4,2 – 300 К. Впервые определена температурная зависимость скорости релаксации магнитного момента мелкого акцепторного центра Al в недеформированном образце кремния. Получены оценки константы сверхтонкого взаимодействия магнитных моментов мюона и электронной оболочки мюонного атома  ${}_{\mu}\text{Al}$  ( $A_{hf}/2\pi \approx 3 \cdot 10^7$   $\text{с}^{-1}$ ) и коэффициента захвата электронов проводимости нейтральным атомом Al в кремнии ( $\beta(\text{Al}^0) \approx 7 \cdot 10^{14}$   $\text{см}^3\text{с}^{-1}$  при 30 К).

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2000

Перевод авторов

Mamedov T.N. et al.

P14-2000-58

Investigation of the Temperature Dependence of the Acceptor Center Relaxation Rate in Silicon by the  $\mu^-$  SR-Method

Results on the temperature dependence of the residual polarization of negative muons in silicon with phosphorus ( $3,2 \cdot 10^{12}$ ,  $2,3 \cdot 10^{15}$  and  $4,5 \cdot 10^{18}$   $\text{cm}^{-3}$ ) and aluminium ( $2 \cdot 10^{14}$  and  $2,4 \cdot 10^{18}$   $\text{cm}^{-3}$ ) impurities are presented. The measurements were carried out in a transverse to the direction of the muon spin magnetic field of 2000 Oe in the temperature range 4.2 – 300 K. The temperature dependence of the relaxation rate of the magnetic moment of the Al shallow acceptor centre in undeformed silicon is determined for the first time. The constant of the hyperfine interaction between the magnetic moment of the muon and that of the electron shell of the muonic atom ( $A_{hf}/2\pi \approx 3 \cdot 10^7$   $\text{s}^{-1}$ ) and the coefficient for capture of free electrons by a neutral aluminium atom in silicon ( $\beta(\text{Al}^0) \approx 7 \cdot 10^{14}$   $\text{cm}^3\text{s}^{-1}$  at 30 K) are estimated.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2000

Редактор Е.Ю.Шаталова. Макет Р.Д.Фоминой

Подписано в печать 11.04.2000

Формат 60 × 90/16. Офсетная печать. Уч.-изд. листов 1,32

Тираж 310. Заказ 51965. Цена 1 р. 59 к.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований  
Дубна Московской области