

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

Т. Н. Мамедов¹⁾, Д. Г. Андрианов*, Д. Герлах Δ , В. Н. Горелкин \diamond , А. В. Стойков, У. Циммерман Δ

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

* Государственный научно-исследовательский и проектный институт редкометаллической промышленности “Гиредмет”, 109017 Москва, Россия

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

\diamond Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 25 июля 2002 г.

После переработки 26 августа 2002 г.

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 4.1 кГс 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 $T \lesssim 50$ К. Анализируются взаимодействия μAl -акцептора, которые могут приводить к наблюдаемым эффектам.

PACS: 71.55.Cn, 76.75.+i

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) состояниях. В предположении, что μAl образуется в нейтральном состоянии μAl^0 и разрешен переход в диамагнитное состояние μAl^- , функция $P(t)$ во внешнем поперечном спину мюона магнитном поле имеет вид [4]

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

где P_0 – поляризация мюона на $1s$ -уровне при $t = 0$; λ – скорость релаксации спина мюона в парамагнитном состоянии АЦ; ν_i – 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_i 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

¹⁾e-mail: tmamedov@nu.jinr.ru

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:

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

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

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; $\omega_e = g\mu_B B/\hbar$ – 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 μ Al-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.

Измерение поляризации мюонов, остановившихся в мишени, проводилось в перпендикулярном спину мюона магнитном поле путем регистрации электронов распада из реакции $\mu^- \rightarrow e^- + \bar{\nu}_e + \nu_\mu$. При этом зависимость количества зарегистрированных электронов от времени имеет вид экспоненты, модулированной косинусом. Период косинуса равен периоду вращения (прецессии) спина мюона в магнитном поле, а амплитуда и ее зависимость от времени определяются поляризацией мюона в момент распада.

Измерения были выполнены на спектрометре GPD [10], расположенном на мюонном канале $\mu E1$; 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 аппаратных спектров подробно описана в [5, 4].

Результаты аппроксимации экспериментальных данных функцией (1) соответствуют тому, что для образца с примесью бора во всем диапазоне температур нерелаксирующая компонента поляризации отсутствует (то есть $C_2 = 0$ и $\nu_i = 0$). В случае кремния с примесью фосфора при $12.5 \text{ K} \leq T \leq 50 \text{ K}$ наблюдается только релаксирующая компонента, а при $T > 52 \text{ K}$ в спектре присутствует лишь нерелаксирующая компонента поляризации 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 $T \lesssim 50 \text{ K}$ и диамагнитным при $T > 52 \text{ K}$.

На рис.1 для данных образцов представлены температурные зависимости сдвига частоты прецессии

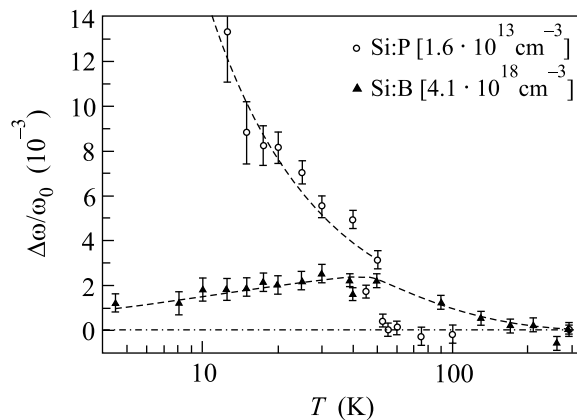


Рис.1. Температурные зависимости сдвига частоты прецессии спина мюона для образцов кремния с примесью бора и фосфора. Штриховые линии проведены для наглядности

спина мюона $\Delta\omega = (\omega - \omega_0)$, где ω_0 – частота прецессии, измеренная для каждого из образцов при $T_0 = 290 \text{ K}$. Для образца Si:P при $T < 50 \text{ K}$ и Si:B при $T > 50 \text{ K}$ штриховые 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 $T < 50 \text{ K}$ в Si:P и при $T > 50 \text{ K}$ 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 аппроксимации настоящих экспериментальных данных в указанных температурных диапазонах зависимостью (2) была определена величина

константы сверхтонкого взаимодействия (A/h) для μAl -акцептора, которая составила (23 ± 2) и $(20.0 \pm \pm 2.3)$ 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 $4.5 \text{ K} \leq T \lesssim 40 \text{ K}$ наблюдается сильное отклонение зависимости $\Delta\omega/\omega_0 = f(T)$ от $1/T$ -закона: при $T \approx 50 \text{ K}$ рост сдвига частоты с уменьшением температуры прекращается и при $T < 50 \text{ K}$, 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

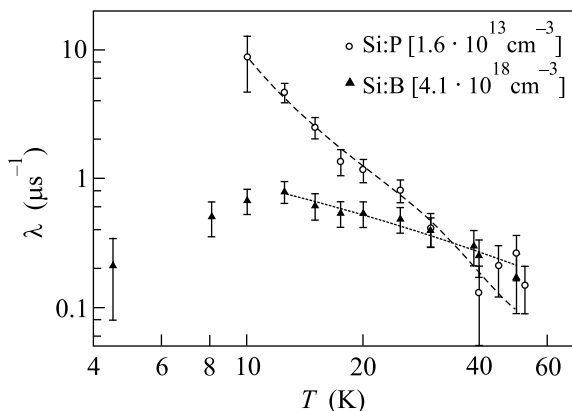


Рис.2. Температурные зависимости скорости релаксации спина мюона для образцов кремния с примесью фосфора и бора. Пунктирные линии – результат аппроксимации зависимостью (3)

экспериментальные данные $\lambda(T)$ согласуются с полученными ранее (см. [6]) для образцов кремния с концентрациями примесей менее $\sim 2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

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 $A/h = 23 \text{ МГц}$; б) для Si:B при $A/h = 20 \text{ МГц}$ и $T > 12 \text{ K}$. Полученные в результате аппроксимации значения параметров C и q составили $C = (1.9 \pm 1.2) \cdot 10^6 \text{ c}^{-1}$, $q = 3.2 \pm 0.3$ для Si:P и $C = (2.4 \pm 0.7) \cdot 10^9 \text{ c}^{-1}$, $q = 1.1 \pm 0.1$ для Si:B. Следует отметить, что в случае Si:B абсолютное значение параметра C может быть неточным, поскольку при аппроксимации экспериментальных данных было использовано значение A/h , следующее из данных по $\Delta\omega/\omega_0$ при $T \geq 50 \text{ K}$.

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 сильно легированном 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 $T > 50 \text{ K}$ имеет место ионизация АЦ. В кремнии n -типа парамагнитное состояние АЦ – μAl^0 , в котором данный центр образуется за времена $t < 10^{-8} \text{ c}$ [11], не является термодинамически равновесным (см. рис.3а, где представлены результаты расчета вероятности

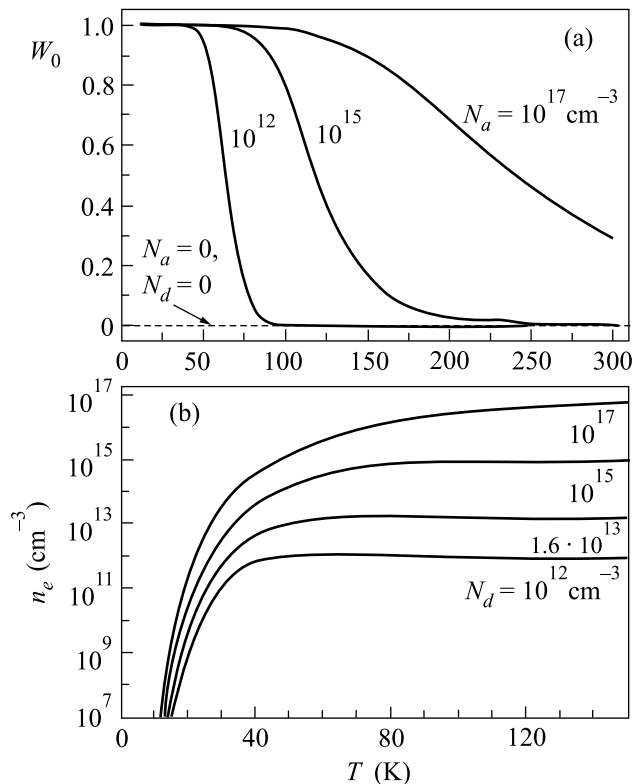


Рис.3. (а) Вероятность W_0 нахождения АЦ μAl в неионизованном (парамагнитном) состоянии при термодинамическом равновесии в кремнии с различными концентрациями донорной N_d и акцепторной N_a примесей; (б) температурная зависимость концентрации электронов проводимости n_e в кремнии при разных концентрациях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

W_0 нахождения акцепторного центра μAl в неионизованном состоянии при термодинамическом равновесии в кремнии n - и p -типа). В принципе ионизация акцептора в кремнии n -типа может быть обусловлена

следующими процессами: 1) захватом электрона из зоны проводимости; 2) тепловой ионизацией, то есть 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.3б). Однако отсутствие надежных данных о сечениях захвата электронов проводимости на нейтральный АЦ (см. [14]) и данных о константе взаимодействия 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 кремнии n -типа 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 $T \lesssim 50 \text{ К}$.

Проблема межпримесных взаимодействий в неупорядоченных системах интенсивно изучается 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 сильно легированном кремнии $p(n)$ -типа межпримесное обменное взаимодействие приводит к уменьшению макроскопической магнитной восприимчивости χ образца: $\chi \sim T^{-\alpha}$, где показатель степени α меньше единицы и уменьшает-

ся при увеличении концентрации примеси, то есть 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 $T \lesssim 50 \text{ К}$ (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 до 5 К. 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 кремнии n -типа АЦ ионизован при $T > 50 \text{ К}$, в то время как в образце с высокой концентрацией примеси p -типа ($[\text{B}] = 4.1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$) АЦ находится в парамагнитном (нейтральном) состоянии практически до комнатных температур. При $T \lesssim 50 \text{ К}$ в кремнии p -типа 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 кремнии n -типа и получить более детальную информацию о межпримесных взаимодействиях в кремнии p -типа.

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.

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, and A. S. Baturin, *Physica* **B289-290**, 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. Abela, C. Baines, X. Donath et al., *Нур. Int.* **87**, 1105 (1994).
11. V. N. Gorelkin, T. N. Mamedov, and D. V. Rubtsov, *Нур. Int.* **C1**, 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 and T. L. Kirpatrick, *Rev. Mod. Phys.* **66**(2), 261 (1994).
16. M. P. Sarachik, D. R. He, W. Li et al., *Phys. Rev.* **B31**, 1469 (1985).
17. A. Roy, M. Turner, and M. P. Sarachik, *Phys. Rev.* **B37**, 5522 (1988); A. Roy and M. P. Sarachik, *Phys. Rev.* **B37**, 5531 (1988).