

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

00-151

P14-2000-151

Т.Н.Мамедов, Д.Г.Андрианов<sup>1</sup>, Д.Герлах<sup>2</sup>, В.Н.Горелкин<sup>3</sup>,  
К.И.Грицай, О.Корманн<sup>4</sup>, Я.Майор<sup>4,5</sup>, А.В.Стойков,  
У.Циммерман<sup>2</sup>

ЗАВИСИМОСТЬ СКОРОСТИ РЕЛАКСАЦИИ  
МАГНИТНОГО МОМЕНТА  
МЕЛКОГО АКЦЕПТОРНОГО ЦЕНТРА  
ОТ КОНЦЕНТРАЦИИ ПРИМЕСИ В КРЕМНИИ

Направлено в «ЖЭТФ»

<sup>1</sup>Государственный научно-исследовательский и проектный институт редкометаллической промышленности «Гиредмет», Москва

<sup>2</sup>Институт Пауля Шеррера, Виллиген, Швейцария

<sup>3</sup>Московский физико-технический институт, Долгопрудный, Россия

<sup>4</sup>Институт Макса Планка, Штутгарт, Германия

<sup>5</sup>Университет Штутгарта, Институт прикладной и теоретической физики, Штутгарт, Германия

2000

Процессы релаксации магнитного момента мелких акцепторов в кремнии экспериментально практически не изучены. Применение метода ЭПР ограничено как высокой скоростью релаксации магнитного момента [1], так и несовершенством исследуемых кристаллов: случайные остаточные деформации и вырождение валентной зоны кремния приводят к значительному неоднородному уширению резонансной ЭПР-линии [2].

Применение отрицательных мюонов, теоретически обоснованное в работе [3] и развиваемое в экспериментальных работах [4–8], позволяет существенно расширить возможности изучения мелких акцепторных центров в кремнии. Так, в работе [8] впервые был определен аналитический вид температурной зависимости скорости релаксации акцепторного центра в кремнии в области температур 4, 2 – 50 К.

Образующийся в результате имплантации отрицательного мюона в кремний мюонный атом моделирует поведение атома алюминия, являющегося акцепторной примесью. Поведение остаточной поляризации отрицательного мюона, находящегося на 1S-уровне мюонного атома, определяется состоянием электронной оболочки данного атома и его взаимодействием со средой. Теоретическое рассмотрение кинетики формирования мюонного атома в кремнии [9], подтверждаемое результатами эксперимента, свидетельствует о том, что в области температур ниже  $\sim 50$  К за время  $\lesssim 10^{-9}$  с акцепторный центр (мюонный атом) образуется в нейтральном (парамагнитном) состоянии  $-\mu\text{Al}^0$ . Во внешнем, поперечном спину мюона магнитном поле имеют место релаксация ( $\lambda$  – скорость релаксации) и сдвиг частоты прецессии ( $\Delta\omega$ ) спина мюона, обусловленные его взаимодействием с магнитным моментом электронной оболочки атома. Связь между измеряемыми в эксперименте параметрами поляризации мюона и величинами, характеризующими магнитные взаимодействия акцепторного центра ( $A_{\text{hf}}$  – константа сверхтонкого взаимодействия магнитных моментов мюона и электронной оболочки в мюонном атоме и  $\nu$  – скорость релаксации магнитного момента электронной оболочки), при  $\nu \gg A_{\text{hf}}$  устанавливается соотношениями [10, 11]:

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

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

где  $\Delta\omega = \omega(T) - \omega_0$  ( $\omega_0$  – угловая частота прецессии спина мюона в

диамагнитном состоянии мюонного атома);  $\hbar = h/2\pi$ ,  $h$  – 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  $B$ ;  $T$  – температура в Кельвинах. Для мелкого акцепторного центра в кремнии  $j = 3/2$  [12].

Доступный экспериментальному изучению диапазон значений  $\nu$  определяется согласно (2) диапазоном измеряемых значений  $\lambda$  и величиной константы сверхтонкого взаимодействия. Принимая  $0,05 \lesssim \lambda \lesssim 20 \text{ мкс}^{-1}$  и используя оценку [8]  $A_{hf}/2\pi \approx 30 \text{ мкс}^{-1}$ , получаем  $5 \cdot 10^9 \lesssim \nu \lesssim 2 \cdot 10^{12} \text{ с}^{-1}$ . Таким образом,  $\mu^-$ -SR-метод позволяет существенно увеличить по сравнению с возможностями метода ЭПР ( $\nu \lesssim 10^9 \text{ с}^{-1}$  [1]) доступный экспериментальному определению верхний предел скоростей релаксации и изучать процессы магнитной релаксации мелких акцепторов в недеформированных образцах кремния в диапазоне температур до  $\sim 50 \text{ К}$  и диапазоне концентраций примесей от области собственной проводимости до концентраций, когда имеет место сильное вырождение полупроводника.

В настоящей работе представлены результаты исследования остаточной поляризации отрицательных мюонов в кристаллическом кремнии с примесью бора ( $8,7 \cdot 10^{13}$ ,  $5,5 \cdot 10^{16}$ ,  $1,4 \cdot 10^{18}$ ,  $4,1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ), галлия ( $1,1 \cdot 10^{15}$ ,  $1,1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ) и мышьяка ( $8,0 \cdot 10^{15}$ ,  $2,0 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ) в диапазоне температур  $4,2 - 300 \text{ К}$ .

Измерения были выполнены на установке “Stuttgart LFQ spectrometer” [13] на мюонном канале  $\mu\text{E4}$  ускорителя протонов Института Пауля Шеррера (PSI, Швейцария). Исследуемые образцы вырезались в форме цилиндров (диаметр – 30 мм, высота – 15 мм) из монокристаллов кремния и устанавливались так, чтобы ось цилиндра совпадала с осью пучка мюонов. Создаваемое кольцами Гельмгольца на образце поперечное магнитное поле составляло 1000 Гс. Долговременная стабильность магнитного поля была не хуже, чем  $10^{-4}$ . Охлаждение образцов осуществлялось потоком паров жидкого гелия, температура стабилизировалась с точностью 0,1 К в диапазоне  $4,2 - 300 \text{ К}$ . Ширина временного канала спектрометра составляла 0,625 нс, общее число каналов в спектре было 16000.

Процедура восстановления функции поляризации отрицательного мюона из экспериментальных  $\mu^-$ -SR-спектров подробно описана в [7]. Полученные в результате обработки экспериментальных данных зависимости

скорости релаксации и сдвига частоты прецессии спина мюона от температуры представлены на рисунке 1 для двух образцов кремния с примесью галлия.

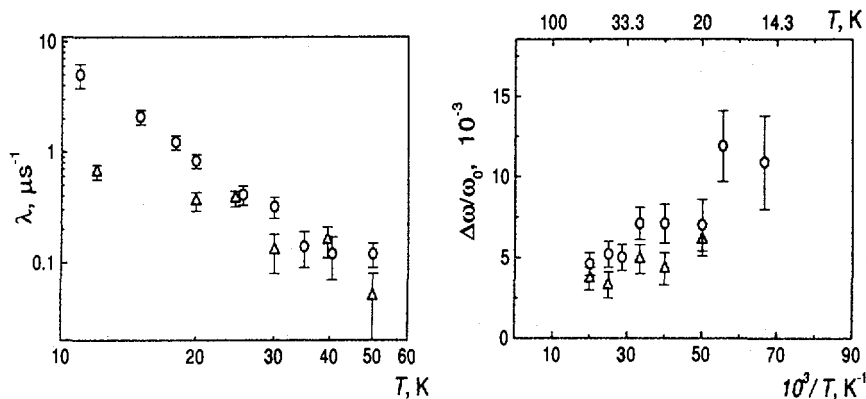


Рис. 1. Температурные зависимости скорости релаксации (слева) и сдвига частоты прецессии спина мюона (справа) для образцов кремния с различной концентрацией примеси галлия ( $\circ$  :  $[Ga] = 1, 1 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ ,  $\Delta$  :  $[Ga] = 1, 1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ )

Температурная зависимость сдвига частоты для всех исследованных образцов (за исключением двух образцов кремния с высокой концентрацией примеси бора  $[B] = 1, 4 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$  и  $[B] = 4, 1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ , где экспериментальные данные недостаточны для определения вида зависимости  $\Delta\omega/\omega_0$ ) 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 получена оценка  $A_{\text{hf}}$  – константы сверхтонкого взаимодействия для мюонного атома алюминия в кремнии (величина  $g$  принималась равной 1,07 [14]). Величины  $A_{\text{hf}}/2\pi$  для всех исследованных образцов примерно одинаковы и составляют  $\approx 3 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$ . Учитывая соотношение между магнитными моментами мюона и ядра атома алюминия, для константы сверхтонкого взаимодействия в акцепторном центре, образованного атомом алюминия в кремнии, получаем  $A_{\text{hf}}(\text{Al})/2\pi \sim 2, 5 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ . Следует подчеркнуть, что подобная оценка делается впервые, другие экспериментальные данные о величине сверхтонкого взаимодействия для мелких

акцепторов в полупроводниках с кристаллической структурой алмаза отсутствуют.

Как следует из (2), релаксация спина мюона обусловлена релаксацией магнитного момента мюонного атома (акцепторного центра). Релаксация магнитного момента акцептора может быть вызвана его взаимодействием с кристаллической решеткой (спин-решеточная релаксация) и спин-обменным рассеянием свободных носителей заряда на акцепторном центре.

Оценка роли различных фоновых процессов, проведенная в [2] для идеального кристалла кремния, показывает, что в диапазоне температур  $10 \lesssim T \lesssim 100$  К основным механизмом релаксации магнитного момента мелкого акцептора является рамановское рассеяние фононов и скорость релаксации  $\nu$  зависит от температуры как  $T^5$ . В области температур ниже 1 К доминирующим становится однофононный процесс ( $\nu \sim T$ ), при  $T > 100$  К может стать заметным вклад резонансного поглощения и испускания фононов (процесс Орбаха,  $\nu \sim e^{-\Delta/T}$ , где  $\Delta$  – разность энергии между основным и возбужденным состояниями акцептора).

Скорость релаксации магнитного момента акцептора за счет спин-обменного рассеяния пропорциональна концентрации свободных носителей заряда в полупроводнике [15]:

$$\nu \approx \sqrt{\frac{2T}{\pi m^*}} \sigma N, \quad (3)$$

где  $m^*$  – эффективная масса носителей заряда;  $\sigma$  – сечение процесса ( $\sigma \approx 4\pi a^2$ ,  $a$  – борковский радиус акцептора);  $N$  – концентрация свободных носителей заряда ( $N \sim N_0 e^{-E_i/T}$ , при  $T \ll E_i$ , где  $N_0$  – концентрация допирующей примеси и  $E_i$  – энергия ее ионизации).

Очевидно, что в случае невырожденного полупроводника при  $T \lesssim 50$  К  $\ll E_i$  ( $E_i \sim 50$  мэВ) концентрация свободных носителей заряда мала и  $\nu \lesssim 10^4$  с<sup>-1</sup>. Однако ситуация коренным образом меняется, если имеет место вырождение полупроводника. Известно [16], что при концентрациях примеси п- или р-типа в кремнии выше  $\sim 5 \cdot 10^{17}$  см<sup>-3</sup> наблюдается уменьшение энергии ионизации примеси, обусловленное формированием примесной зоны. Для полностью вырожденного полупроводника  $E_i \approx 0$  и  $N \approx N_0$ . Приняв для оценки  $T = 10$  К,  $a = 10$  Å [17],  $m^* = 0,3 m_e$  [18] и  $N_0 = 4 \cdot 10^{18}$  см<sup>-3</sup>, находим, что для вырожденного полупроводника скорость релаксации магнитного момента акцепторного центра за счет спин-обменного рассеяния составляет  $\nu \sim 10^{12}$  с<sup>-1</sup> и значительно

превышает скорость спин-решеточной релаксации (например, согласно [8]  $\nu \sim 3 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$  при  $T = 10 \text{ K}$ ).

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:

$$\nu(T) = C \cdot T^q. \quad (4)$$

При фитировании экспериментальных данных принималось, что  $A_{\text{hf}}/2\pi = 3 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$ . Полученные значения параметров  $C$  и  $q$  для различных образцов приведены в табл.1. На рисунке 2 представлены данные по зависимости параметра  $q$  от концентрации примеси (приведены результаты настоящей работы и работ [4, 6–8]).

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

Примесь	$n, \text{ см}^{-3}$	$C, 10^6 \text{ с}^{-1}$	$q$	$\nu(T = 10 \text{ K}), 10^9 \text{ с}^{-1}$
B	$8,7 \cdot 10^{13}$	$59 \pm 43$	$2,27 \pm 0,22$	11
Ga	$1,1 \cdot 10^{15}$	$6,5 \pm 5,2$	$3,00 \pm 0,26$	6,5
As	$8,0 \cdot 10^{15}$	$2,2 \pm 1,7$	$3,30 \pm 0,25$	4,4
B	$5,5 \cdot 10^{16}$	$13 \pm 10$	$2,67 \pm 0,24$	6,3
As	$2,0 \cdot 10^{17}$	$4,6 \pm 3,9$	$3,07 \pm 0,28$	5,4
Ga	$1,1 \cdot 10^{18}$	$(1,0 \pm 0,3) \cdot 10^4$	$0,90 \pm 0,10$	79
B	$1,4 \cdot 10^{18}$	$(1,3 \pm 0,3) \cdot 10^4$	$0,82 \pm 0,12$	85
B	$4,1 \cdot 10^{18}$	$(1,4 \pm 0,7) \cdot 10^5$	$0,28 \pm 0,21$	260

Как можно видеть из таблицы и рисунка, в области концентраций до  $\sim 5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$  скорость релаксации магнитного момента акцептора практически не зависит от концентрации (показатель степени  $q$  имеет величину порядка 3, скорость релаксации при фиксированной температуре (например, при  $T = 10 \text{ K}$ , см. таблицу) также примерно постоянна во всем диапазоне). Очевидно, что влияние спин-обменного рассеяния, скорость которого пропорциональна концентрации свободных носителей

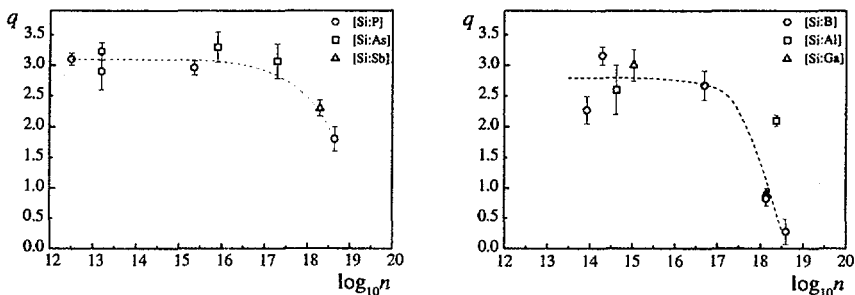


Рис. 2: Зависимость показателя степени  $q$  в функции  $\nu = C \cdot T^q$  от концентрации примеси ( $n$ ) в n- (слева) и p-типа (справа) образцах кремния (пунктирные линии проведены для наглядности)

заряда, в данном диапазоне концентраций пренебрежимо мало. Как уже отмечалось в [8], отличие температурной зависимости скорости релаксации магнитного момента акцепторного центра от зависимости вида  $T^5$  [2], может быть обусловлено тем фактом, что в [2] при рассмотрении идеального кристалла кремния не учитывалось время жизни фононов, которое при температурах ниже температуры Дебая меняется, как  $T^{-2}$  [19].

При увеличении концентрации примеси выше  $\sim 10^{18} \text{ см}^{-3}$  наблюдается существенное ослабление температурной зависимости скорости релаксации (уменьшение параметра  $q$ ), одновременно скорость релаксации при фиксированной температуре возрастает более чем на порядок в узком диапазоне изменения концентраций. Известно [18], что при высоких концентрациях примеси фононный спектр кристалла существенно меняется, что должно приводить к изменению скорости спин-решеточной релаксации. Однако, исходя из факта постоянства скорости релаксации в широком диапазоне концентраций примеси от  $\sim 5 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$  до  $\sim 5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ , трудно ожидать столь резкого изменения поведения скорости спин-решеточной релаксации при увеличении концентрации выше  $\sim 10^{18} \text{ см}^{-3}$ . С другой стороны, в данной области концентраций примеси в кремнии происходит переход к металлическому типу проводимости [20], и как показывают приведенные выше оценки, доминирующим механизмом в релаксации магнитного момента акцептора может стать спин-обменное рассеяние свободных носителей заряда. Независимой проверкой роли спин-обменного рассеяния в релаксации магнитного момента

могло бы быть проведение измерений в образце кремния с изоэлектронной примесью.

Авторы выражают благодарность дирекции Института Пауля Шерера (Швейцария) за предоставление возможности проведения данных 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.W.Ludwig, H.H.Woodbury, *Electron Spin Resonance in semiconductors*, New York: Academic Press 1962.
- [2] Y.Yafet, *J. Phys. Chem. Solids* **26**, 647 (1965).
- [3] В.Н.Горелкин, В.П.Смилга, *ЖЭТФ* **66**, 1201 (1974).
- [4] В.Н.Горелкин, В.Г.Гребинник, К.И.Грицай и др., *Ядерная физика* **56**, вып.10, 29 (1993).
- [5] W.Beez, T.Grund, M.Hampele et.al., *PSI Annual Report F1, Annex I (Villigen, Switzerland: PSI)*, 125 (1994).
- [6] В.Н.Горелкин, В.Г.Гребинник, К.И.Грицай и др., *Письма в ЖЭТФ* **63**, 539 (1996).
- [7] Т.Н.Мамедов, В.Н.Дугинов, Д.Герлах и др., *Письма в ЖЭТФ* **68**, 61 (1998).
- [8] Т.Н.Мамедов, Д.Г.Андрианов, Д.Герлах и др., *Письма в ЖЭТФ* **71**, 637 (2000).
- [9] V.N.Gorelkin, T.N.Mamedov, D.V.Rubtsov, *Hyperfine Interact.* **C1**, 191 (1996).
- [10] V.N.Gorelkin, 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)



- [11] V.N.Gorelkin, T.N.Mamedov, 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.I-23. (Труды конференции в печати: Physica B)
- [12] Г.Л.Бир, Г.Е.Пикус, *Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках*, М.: Наука, 1972.
- [13] R.Scheuermann, J.Schmidl, A.Seeger et.al., *Hyperfine Interact.* **106**, 295 (1997).
- [14] H.Neubrand, *Phys. Stat. Sol. (b)* **86**, 269 (1978).
- [15] В.Г.Носов, И.В.Яковлева *ЖЭТФ* 43, 1750 (1962).
- [16] В.И.Фистуль, *Сильно легированные полупроводники*, М.: Наука 1967.
- [17] R.C.Enck, A.Honig, *Phys. Rev.* **177**, 1182 (1969).
- [18] Ч.Киттель, *Введение в физику твердого тела*, М.: Наука 1978.
- [19] И.Я.Померанчук, *Собрание научных трудов*, т.1, М.: Наука 1972.
- [20] P.Ph.Edwards, M.J.Sienko, *Phys. Rev. B* **17**, 2575 (1978).

Рукопись поступила в издательский отдел  
28 июня 2000 года.