1988 PHYSICS AND TECHNICS OF SEMICONDUCTORS vol. 22, N 2

КВАНТОВЫЙ ГАРМОНИЧЕСКИЙ РЕЗОНАНС В КРЕМНИИ

Бобровников Ю. А., Казакова В. М., Фистуль В. И.

При температуре жидкого гелия в условиях $\hbar\omega/kT \ll 1$ получена полная угловая зависимость гармонических переходов ($\Delta n > 1$) между нижними уровнями Ландау в валентной зоне кремния. Проведено сопоставление полученных данных с квантовой теорией носителей во внешнем магнитном поле, развитой Латинджером для алмазоподобных полупроводников. Рассчитанная угловая зависимость квантовых гармонических и классических линий циклотронного резонанса хорошо согласуется с экспериментом. Значения констант в гамильтониане Латинджера равны $\gamma_1=4.22$, $\gamma_2=0.53$, $\gamma_3=1.38$.

Введение. В спектре циклотронного резонанса (ЦР) чистых образцов кремния и германия, кроме классических линий легких и тяжелых дырок и их гармоник, наблюдается множество слабых по интенсивности линий квантового ЦР или линий ЦР квантовых дырок. Их происхождение связано с неэквидистантностью уровней Ландау с низким значением квантового числа n. Переходы между этими уровнями, согласно квантовой теории ЦР Латинджера, чувствительны к деталям энергетической структуры валентной зоны вблизи точки вырождения $k=0$ [1]. Это позволяет путем сопоставления теории с экспериментом точно определить константы в законе дисперсии валентной зоны, а также оценить пределы применимости самого метода эффективных масс в теории алмазоподобных полупроводников.

Экспериментальное исследование спектра квантовых дырок в кремнии сталкивается с рядом серьезных трудностей, связанных прежде всего с обилием и малой интенсивностью линий. Большинство этих линий анизотропны и перекрываются с интенсивными классическими линиями, что приводит к трудностям в снятии угловой зависимости спектра. Эти трудности частично устраняются, если эксперимент проводится в квантовых условиях $\eta=\hbar\omega/kT > 1$, когда заселенными оказываются нижние уровни Ландау. Однако и в этих условиях спектр все еще остается сложным и плохо разрешенным. Причина этого состоит в близости значений эффективных масс большинства квантовых линий и их относительно большой ширины (по сравнению с германием), что приводит к значительному перекрыванию линий в спектре. С другой стороны, точному определению эффективных масс препятствует «k_H-эффект», возникающий от вклада в орбитальное квантованное движение дырок продольной к магнитному полю составляющей волнового вектора k_H [2]. Этот эффект приводит к сдвигу и искажению формы линии, причем его влияние для кремния значительнее из-за большей плотности уровней Ландау на единичный интервал энергии по сравнению с германием [2, 3]. Подавление вклада k_H достигается увеличением значения η, т. е. путем понижения температуры и увеличения частоты измерения. Указанные трудности обусловливали практическую невозможность снятия угловой зависимости ни для одного из разрешенных (с $\Delta n=1$) квантовых переходов в кремнии.

Попытки интерпретации квантового спектра были предприняты во многих работах [2-6]. В работе Стиклера и др. [3] были получены угловые зависимости некоторых квантовых переходов лишь для небольших интервалов углов. В работе Оунера-Петерсона и Самуэльсена [4] получены наиболее полные экспериментальные данные по квантовому ЦР в кремнии. Во всех работах по данному вопросу сопоставление теории с экспериментом проводилось лишь при определенных ориентациях магнитного поля по отношению к кристаллическим осям (обычно при $\mathbf{H} \parallel [111]$, $[100]$, $[110]$). Однако для корректного описания спектра этого недостаточно, и поэтому имели место неточности в интерпретации ряда квантовых линий.

Отсутствие достаточно полной экспериментальной угловой зависимости спектра, невысокая точность определения эффективных масс, а также значительные расчетные трудности, по-видимому, привели исследователей к отказу от расчета угловой зависимости квантового спектра, столь необходимого для его интерпретации. К настоящему времени лишь для германия с более простой экспериментальной ситуацией Хенселу и Сузуки удалось получить достаточно полную интерпретацию спектра ЦР с применением методики однородного сжатия кристалла [5].

В данной работе нам удалось экспериментально получить полную угловую зависимость некоторых квантовых гармонических переходов, т. е. переходов с $\Delta n > 1$, что позволило провести детальное сопоставление с теорией Латинджера и интерпретировать на основе этой теории большинство линий квантовых дырок в кремнии.

Экспериментальные результаты. Для экспериментов по квантовому ЦР необходимы чистые образцы и соблюдение условия $\eta > 1$. Выполнение первого условия приводит к достаточно узким линиям, что способствует разрешению спектра. Выполнение второго условия уменьшает число линий квантового ЦР (упрощает спектр), уменьшает интенсивность классических линий, связанных с переходами между эквидистантными уровнями Ландау с большими квантовыми числами, и снижает влияние на спектр k_H-эффекта.

Для исследований нами были выбраны бездислокационные образцы p-типа, выращенные методом зонной плавки в особо чистых условиях. Удельное сопротивление образцов составляло $\rho = 3.5 \cdot 10^4$ Ом·см. Образцы вырезались в виде параллелепипеда $0.4 \times 0.4 \times 0.5$ см и перед измерениями обрабатывались в полирующем травителе $3HNO_3 + HF$. Исследования проводились на радиоспектрометре ЭПР SE/X-2543 с частотой 9.2 ГГц в резонаторе с типом колебаний TE_{102} при температуре жидкого гелия 4.2 К. Через окно в резонаторе осуществлялась подсветка образца белым светом. Образец в резонаторе ориентировался таким образом, чтобы при его вращении магнитное поле оставалось в плоскости (110). Точность определения эффективных масс была не хуже 0.002 для гармонических линий и 0.005 для классических линий. В данной методике образец располагался в пучности магнитного вектора СВЧ волны, а не электрического, как это всегда делается в экспериментах по циклотронному резонансу. Однако незначительная электрическая компонента СВЧ колебаний всегда содержится в центре резонатора, и ее величины достаточно для наблюдения эффекта в силу большей (на 12 порядков) вероятности электрического дипольного перехода по сравнению с магнитнодипольным. Использование подобной методики со слабой электрической компонентой СВЧ мощности, падающей на образец, позволяет избежать разогрева носителей СВЧ полем и связанных с ним уширения и искажения линий ЦР. Однако и в этом случае нам не удалось избежать уширения классических линий даже при самых минимальных уровнях СВЧ мощности, достижимых на нашем радиоспектрометре. Это свидетельствует о высокой чистоте исследуемых нами образцов. Другое преимущество данной методики состоит в том, что она позволяет наблюдать разрешенные гармонические переходы с $\Delta n = 3$, обязанные продольной к внешнему магнитному полю электрической компоненте СВЧ колебаний. На рис. 1 приведен полученный по данной методике спектр ЦР в ориентации [110]. Некоторые из линий в группе h отвечают переходам с $\Delta n = 3$.

При использованных в наших экспериментах частоте и температуре величина $\eta = 0.105$, т. е. квантовые условия ($\eta > 1$) не выполняются. Это приводит к тому, что разрешенные линии с $\Delta n = 1$ имеют малую амплитуду и искажены k_H-эффектом. Следы этих линий наблюдаются лишь вблизи ориентаций [100] и [110] (рис. 2). Однако, по-видимому, именно нарушение квантовых условий способствует в данном случае усилению интенсивности гармонических переходов с $\Delta n > 1$, что связано с влиянием k_H-эффекта на перемешивание уровней

Ландау. Эти гармонические линии квантового ЦР имеют малую ширину (8—15 Э), располагаются в области малых магнитных полей и не перекрываются с интенсивными классическими линиями, что и позволило получить их полную угловую зависимость, представленную на рис. 2.

Теория и метод расчета. Для нахождения уровней энергии дырок в валентной зоне в присутствии магнитного поля и переходов между ними следует решить уравнение Шредингера $D\Psi = E\Psi$. Теоретические исследования, проведенные в работах [2, 3], показывают, что для гармонических переходов влияние k_H-эффекта на форму и сдвиг линий несущественно. На это указывает также симметричная форма исследуемых квантовых линий, приведенных на рис. 1. Поэтому в данной работе решение проведено в приближении $k_H = 0$.

Гамильтониан D с точностью до членов порядка k^2 и в пренебрежении спин-орбитальным взаимодействием, согласно теории Латинджера, имеет вид

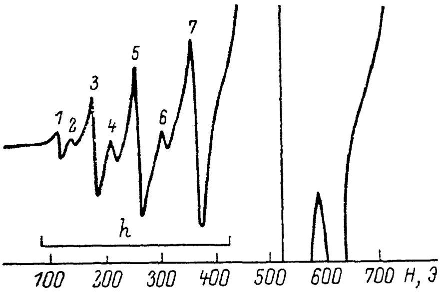

Рис. 1. Спектр линий квантового гармонического резонанса в кремнии.

Нумерация линий в группе h та же, что и на рис. 2. $\mathbf{H} \parallel [110]$.

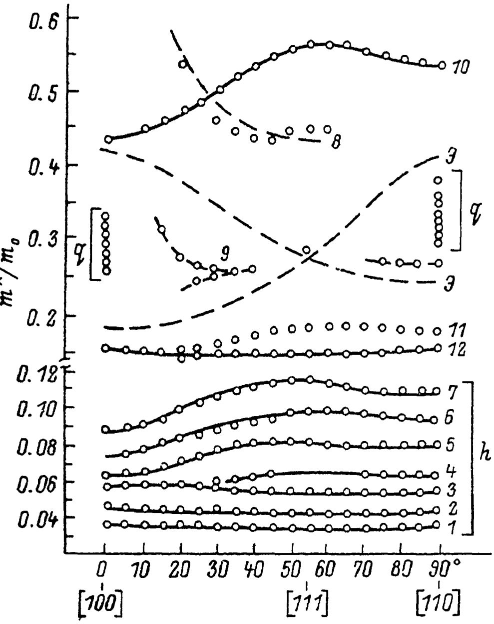

Рис. 2. Угловая зависимость эффективных масс линий ЦР в кремнии.

h — группа линий квантового гармонического резонанса; q — линии квантового ЦР; $Э$ — электронные линии; *10* — тяжелая дырка; *12* — легкая дырка; *11* — 3-я гармоника тяжелых дырок; *13* — 2-я гармоника тяжелых дырок. Линии *1—7* в группе h отвечают следующим переходам на схеме рис. 3: *1* — (*b1—a4*), *2* — (*a1—a3*), *3* — (*d0—d3*), *4* — (*b1—a2*), *5* — (*b0—b3*), *6* — (*b0—c6*), *7* — (*b0—b6*).

$$D = \frac{\hbar^2}{m_0}\left\{\left(\gamma_1 + \frac{5}{2}\gamma_2\right)\frac{k^2}{2} - \gamma_2 (k_x^2 J_x^2 + \text{цп}) - 2\gamma_3 [\{k_x k_y\}\{J_x J_y\} + \text{цп}] + \frac{e}{c}\varkappa \mathbf{J}\cdot\mathbf{H}\right\}. \quad (1)$$

Здесь k_x, k_y, k_z — операторы компонент волнового вектора, J_x, J_y, J_z — матричные операторы углового момента для $J=3/2$ размерностью 4×4, их выражения приведены в [1], $\{k_x k_y\} = (1/2)(k_x k_y + k_y k_x)$ и т. д. — симметризованные произведения соответствующих операторов, цп — циклическая перестановка $x \to y \to z$.

Гамильтониан (1) содержит четыре параметра — γ_1, γ_2, γ_3 и $\varkappa$, из которых $\varkappa$ выражается через три остальных соотношением [3]

$$\varkappa = (3\gamma_3 + 2\gamma_2 - \gamma_1 - 2)/3. \quad (2)$$

Таким образом, в гамильтониане (1) остаются три независимых параметра — γ_1, γ_2, γ_3, подлежащих определению путем сопоставления с экспериментальным спектром ЦР. Эта тройка, или «триада» [5], чисел связана с константами A, B и C в законе дисперсии валентной зоны

$$E(k) = \frac{\hbar^2}{2m_0}\left\{Ak^2 \pm [B^2k^4 + C^2(k_x^2k_y^2 + \text{цп})]^{1/2}\right\} \quad (3)$$

соотношениями

$$A = \gamma_1, \quad B = 2\gamma_2, \quad C^2 = 12(\gamma_3^2 - \gamma_2^2). \quad (4)$$

Константы A, B и C были ранее определены из экспериментов по классическому ЦР как в германии, так и в кремнии [7]. Линии квантового ЦР, описываемые гамильтонианом (1), чувствительны к значениям параметров триады, что позволяет определить их с большой точностью (например, Хенселу и Сузуки удалось определить для германия константы триады с точностью 0.02 [5]). Однако точное определение этих констант не является все же главной задачей исследований по квантовому ЦР. Более существенной является оценка пределов применимости теоретической модели, на основе которой построен гамильтониан (1). Поэтому в данной работе мы не ставили целью прецизионное определение констант триады, а стремились лишь дать адекватное описание эксперимента по угловой зависимости спектра с помощью гамильтониана (1), так как эта задача до настоящего времени остается не решенной.

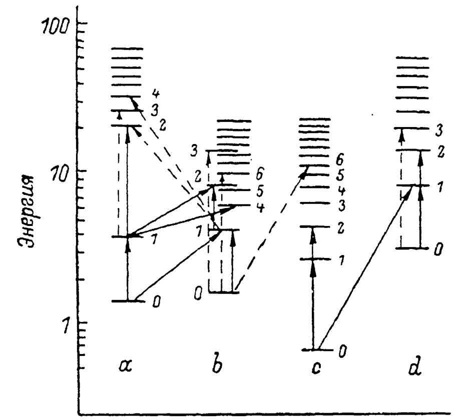

Рис. 3. Уровни Ландау и переходы в валентной зоне кремния.

Сплошные стрелки — разрешенные переходы; штриховые — гармонические переходы; a, d — столбцы легких дырок; b, c — столбцы тяжелых дырок. $\mathbf{H} \parallel [111]$.

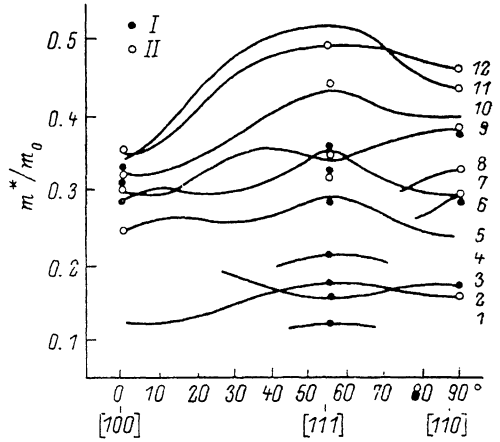

Рис. 4. Рассчитанная угловая зависимость эффективных масс разрешенных переходов в валентной зоне кремния.

Линии *1—12* отвечают следующим переходам на схеме рис. 3: *1* — ($c0$—$d1$), *2* — ($d0$—$d1$), *3* — ($d1$—$d2$), *4* — ($a1$—$b4$), *5* — ($a0$—$b1$), *6* — ($b1$—$b2$), *7* — ($b0$—$b1$), *8* — ($b4$—$b8$), *9* — ($a0$—$a1$), *10* — ($a1$—$b2$), *11* — ($c1$—$c2$), *12* — ($c0$—$c1$). Экспериментальные данные из работ: *I* — [3], *II* — [4].

Для численного решения уравнения Шредингера использовался переход к представлению чисел заполнения с помощью операторов рождения a^+ и уничтожения a. Последние получаются из перестановочных соотношений между операторами компонент волнового вектора k_1 и k_2 (в лабораторной системе координат) в присутствии магнитного поля и имеют вид [1]

$$a = \frac{1}{\alpha\sqrt{2}}(k_1 - ik_2),$$
$$a^+ = \frac{1}{\alpha\sqrt{2}}(k_1 + ik_2), \tag{5}$$

где $\alpha = (eH/c)^{1/2}$. Преобразование гамильтониана (1) с помощью (5) приводит к уравнению Шредингера в виде

$$D^{|4|\times 4|}(a, a^+)\,\Psi^{|4|} = E\Psi^{|4|}, \tag{6}$$

в котором $D^{|4\times 4|}(a, a^+)$ — матричный оператор размерностью 4×4, а волновая функция $\Psi^{|4|}$ — четырехкомпонентный вектор, столбец, каждая компонента которого выражается в виде линейной комбинации волновых функций гармонического осциллятора [6]. Выполнение указанных в (6) операций приводит далее к бесконечной системе линейных алгебраических уравнений, с которой связана симметричная квадратная матрица бесконечного порядка, являющаяся оператором D в представлении чисел заполнения. Задача сводится к нахождению собственных значений и собственных векторов усеченной матрицы в этом представлении. Выбор порядка матрицы определяется экспериментальной точностью измерения эффективных масс исследуемых линий. Численный эксперимент показал, что для целей настоящей работы достаточно выбрать порядок матрицы, равный 60. Собственные значения и собственные векторы матрицы (диагонализация) находились методом вращений [8]. Собственные векторы использовались для вычисления интенсивностей разрешенных переходов по методу, изложенному в [3, 5]. Эти вычисления были необходимы для отыскания всех интенсивных разрешенных переходов между нижними уровнями Ландау. Все расчеты проводились на ЭВМ ЕС-1045 с удвоенной точностью. Варьировались параметры триады γ_1, γ_2, γ_3 с шагом 0.02 до наилучшего совпадения рассчитываемых и экспериментальных эффективных масс по всей угловой зависимости спектра. Такое совпадение получено при значениях параметров $\gamma_1=4.22$, $\gamma_2=0.53$, $\gamma_3=1.38$.

На рис. 3 представлена рассчитанная схема уровней Ландау в ориентации [111]. Решение приводит к четырем столбцам собственных значений в соответствии с размерностью оператора $D^{|4\times4|}$ (a, a^+) [1]. При больших значениях n $(n\to\infty)$ эти столбцы разделяются на две пары с эквидистантными уровнями энергии, каждая из которых описывает классические легкие и тяжелые дырки.

Величина энергии на рис. 3 выражена в единицах $\hbar eH/m_0c$. В такой системе единиц обратная разность собственных значений дает непосредственно величину эффективной массы перехода, т. е.

$$(m^*/m_0)_{n\rho,\, n'\rho'}=(E_{n\rho}-E_{n'\rho'})^{-1}, \tag{7}$$

где ρ — индекс столбца собственных значений (рис. 3).

На рис. 2 сплошными линиями представлена рассчитанная угловая зависимость эффективных масс гармонических линий. Максимальное расхождение между рассчитанными и экспериментальными значениями эффективных масс не превышает величины 0.004. На этом же рисунке приведены результаты расчета угловой зависимости эффективных масс легких и тяжелых дырок, полученной с помощью формулы

$$m^*=\frac{\hbar^2}{\pi}\int\limits_0^{\pi/2}\frac{d\varphi}{A\pm\{B^2+{}^1/_4C^2\,[1+g(\varphi)]\}^{1/2}}, \tag{8}$$

в которой константы A, B и C определены с помощью (4), а функция g (φ) приведена в [7].

Полученные решения были использованы также для построения угловой зависимости эффективных масс разрешенных квантовых переходов. На рис. 4 приведена эта зависимость; там же приведены экспериментальные данные по квантовому ЦР в главных ориентациях, взятые из работ [3, 4].

Обсуждение результатов. Как видно из рис. 2, теоретические угловые зависимости эффективных масс квантовых гармонических и классических линий хорошо согласуются с экспериментальными данными, полученными в настоящей работе. Однако сопоставление теоретической угловой зависимости разрешенных квантовых переходов (рис. 4) с экспериментальной, полученной в работе [4] в ограниченном интервале углов, выявляет существенные расхождения для линий ЦР с большой эффективной массой ($m^*/m_0>0.4$). Одна из таких линий, наблюдаемых в [4], с $m^*/m_0=0.42$ в ориентации [111] имеет необычную угловую зависимость и отнесена авторами [4] к линии квантового спектра. Мы рассчитали угловое положение этой линии, используя константы триады, определенные в [4], и не получили даже качественного согласия с экспериментом. Линии с подобной угловой зависимостью наблюдались также и в наших экспериментах (линии *8* и *9* на рис. 2). Большая интенсивность этих линий (по сравнению с квантовыми) и сильная асимметрия приводят к предположению, что данные линии принадлежат переходам между высоколежащими уровнями Ландау (классические линии), но сильно искажены k_H-эффектом. Аналогичную линию, по-видимому, наблюдали Хенсел и Сузуки в германии в ориентации [111] и отнесли ее к классической тяжелой дырке, смещенной k_H-эффектом [5]. Это предположение подтверждается также теоретическими расчетами смещения классических линий ЦР в зависимости от величины k_H [7, 9]. Линия *9* есть, по-видимому, вторая гармоника линии *8*.

Для многих линий с $m^*/m_0 > 0.45$, исследованных в [4], наблюдается лишь качественное согласие с представленной на рис. 4 угловой зависимостью. Подобное расхождение теории с экспериментом трудно объяснить неточным определением констант триады или использованными приближениями. Хорошее согласие расчетных и экспериментальных данных по угловой зависимости квантовых гармонических переходов (рис. 2) показывает, что полученные нами константы γ_1, γ_2, γ_3, описывающие основное взаимодействие в кристалле, близки к истинным. Можно предположить, что указанное расхождение связано с экспериментальными трудностями снятия угловой зависимости и определения эффективных масс плохо разрешенных линий в спектре квантового ЦР. Поэтому для сопоставления с представленными на рис. 4 расчетами необходимы тщательные измерения угловой зависимости на очень чистых образцах в квантовых условиях $\eta > 1$. Данные, приведенные на рис. 4, могут быть использованы в подобных экспериментах для идентификации наблюдаемых квантовых линий ЦР.

Литература

[1] Luttinger J. M. — Phys. Rev., 1956, v. 102, N 4, p. 1030—1041.
[2] Goodman R. R. — Phys. Rev., 1961, v. 122, N 2, p. 397—405.
[3] Stickler J. J., Zeiger H. J., Heller G. S. — Phys. Rev., 1962, v. 127, N 4, p. 1077—1084.
[4] Owner-Peterson M., Samuelsen M. R. — Phys. St. Sol., 1968, v. 28, N 1, p. 211—222.
[5] Suzuki K., Hensel J. C. — Phys. Rev. B, 1974, v. 9, N 10, p. 4184—4218.
[6] Evtuhov V. — Phys. Rev., 1962, v. 125, N 6, p. 1869—1879.
[7] Dresselhaus G., Kip A. F., Kittel G. — Phys. Rev., 1955, v. 98, N 2, p. 368—384.
[8] Воеводин В. В. Вычислительные основы линейной алгебры. М., 1977. 303 с.
[9] Zeiger H. J., Lax B., Dexter R. N. — Phys. Rev., 1957, v. 105, N 2, p. 495—501.

Московский институт
тонкой химической технологии
им. М. В. Ломоносова

Получена 16.12.1986
Принята к печати 2.09.1987