

© 2011 Г. В. Верцімаха, В. В. Михайловський, В. Й. Сугаков

*Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ***ДЕГРАДАЦІЯ КВАНТОВИХ ТОЧОК ТА ЗМІНА ЇХНІХ ЕНЕРГЕТИЧНИХ СПЕКТРІВ У НАПІВМАГНІТНИХ НАПІВПРОВІДНИКАХ ПІД ДІЄЮ ОПРОМІНЕННЯ**

Досліджено розмиття профілю потенціалу для носіїв заряду у квантових точках у бінарних напівпровідниках та зміщення квантованих рівнів електронів, дірок та екситонів під дією ядерного опромінення. Розмиття відбувається внаслідок перерозподілу атомів різного сорту між бар'єром і квантовою точкою завдяки радіаційно-прискореній дифузії. Показано, що в напівмагнітних напівпровідниках (наприклад, у CdTe/(Cd, Mn)Te), в яких існує ефект гігантського магнітного розщеплення екситонних рівнів, перерозподіл іонів марганцю під дією опромінення призводить до суттєвого збільшення розщеплення електронних рівнів у магнітному полі у квантовій точці.

*Ключові слова:* радіаційно-стимульована дифузія, квантові точки, напівмагнітні напівпровідники.

**Вступ**

Перспективи широкого застосування напівпровідникових структур з квантовими точками вимагають проведення досліджень впливу на системи різноманітних зовнішніх факторів, зокрема ядерного опромінення. Унаслідок опромінення високоенергетичними частинками змінюється структура та взаємне розташування компонентів багатокомпонентної системи. Інтерпретація результатів робіт [1 - 5], виконаних у цьому напрямку, є складною внаслідок різноманітності процесів, що відбуваються в кристалах при ядерному опроміненні. Бажано дослідити вплив опромінення на ефекти, чутливі до зміни структури та розподілу елементів у кристалі.

У даній роботі розглядається вплив зовнішнього опромінення на енергетичні спектри електронів, дірок та екситонів у квантових точках на основі напівмагнітних напівпровідників. Такі структури поєднують відомі властивості напівмагнітних напівпровідників (гігантське розщеплення екситонних станів [6, 7]) із сильною локалізацією носіїв заряду в нульвимірній структурі. На сьогодні успіхи в технології вирощування низьковимірних гетероструктур дають змогу створювати напівмагнітні квантові точки – кристали, що містять магнітні іони в бар'єрних шарах [8] або всередині [9] квантової точки. Так, у [8] були експериментально отримані та досліджені квантові точки CdTe в матриці MnTe. Можливість управляти за допомогою зовнішнього магнітного поля спіном локалізованих носіїв дає підстави сподіватись на прикладне застосування даних структур.

Конкретні розрахунки були проведені для квантових точок у системі  $Cd_{1-x}Mn_xTe/CdTe$ . Як відомо, у такій системі квантова точка формується внаслідок неоднорідного розподілу марганцю: всередині квантової точки марганець відсутній

або його концентрація є малою, зовні частина атомів кадмію заміщуються атомами марганцю. Характерною особливістю напівмагнітних напівпровідників є сильна залежність електронних спектрів від магнітного поля [6, 7], зокрема поява гігантського розщеплення спектрів, зумовленого обмінною взаємодією спінів носіїв заряду з магнітними іонами. Під дією опромінення форма потенціалу для носіїв заряду у квантовій точці змінюється внаслідок перерозподілу концентрації марганцю, викликаного опроміненням. Це повинно привести до істотної зміни спектрів електронів, дірок та екситонів у магнітному полі. Ефективність цього процесу було показано при розрахунку впливу опромінення на екситонні спектри у квантових ямах у напівмагнітних напівпровідниках [10, 11]. На дослідженні ефекту розщеплення рівнів під опроміненням ми зосередимось у даній роботі. Спочатку вивчимо залежність розподілу магнітних іонів у квантовій точці від часу при опроміненні. Потім знайдемо зміну форми потенціалу для носіїв заряду у квантовій точці і проведемо квантово-механічні розрахунки екситонних спектрів квантової точки опроміненого кристала.

**Зміна профілю концентрації марганцю у квантовій точці під дією опромінення**

Обидва досліджувані в роботі ефекти – зміна форми потенціалу для носіїв заряду у квантовій точці і розщеплення рівнів у квантовій точці – визначаються розподілом магнітних іонів у квантовій точці та в її околі. Тому серед багатьох процесів, що супроводжують проходження високоенергетичних частинок у кристалі, врахуємо лише ті, що приводять до просторового перерозподілу магнітних іонів. Основним серед цих процесів є радіаційно-прискорена дифузія. У цьому разі задача про розподіл магнітних іонів зводиться до розв'язання рівняння дифузії, в якому коефіцієнт дифузії залежить від опромі-

нення. Радіаційно-стимульована дифузія описана в [12]. Крім звичайної теплової дифузії, що зростає з температурою за рахунок збільшення числа та рухливості вакансій, в опромінених кристалах існує дифузія внаслідок утворення опроміненням вакансій та міжвузлових атомів. Дифузія атомів у міжвузлових положеннях є великою, і незважаючи на те, що концентрація таких атомів є надзвичайно малою (оскільки міжвузлові атоми швидко захоплюються різноманітними стоками), таку дифузію теж необхідно враховувати.

Даних про коефіцієнти дифузії окремих компонентів та радіаційних дефектів у (Cd, Mn)Te мало. Щоб зробити кількісні оцінки, використаємо певні властивості системи. Як уже зазначалося, в розглядуваній системі атоми марганцю заміщують атоми кадмію. При цьому атоми кадмію та марганцю мають однакову кількість електронів на зовнішніх оболонках; енергії збудження електронних рівнів цих атомів майже збігаються (збуджений електронний рівень домішкового марганцю знаходиться в зоні провідності кадмію). При впровадженні атома марганцю замість кадмію спостерігається дуже мала зміна періоду ґратки, про що свідчить той факт, що на границях квантових структур (Cd, Mn)Te/CdTe деформації не виникають [13]. Це говорить про те, що в цій системі взаємодія атомів марганцю з оточенням майже така сама, як і атомів кадмію. Тому будемо вважати, що енергії активації й швидкості міграції дефектів будуть однаковими для кадмію і марганцю. У такому наближенні при однорідному опроміненні єдиною неоднорідністю системи буде розподіл марганцю, викликаний наявністю в початковий момент квантової точки (і, відповідно, розподіл кадмію), а розподіл вакансій і міжвузлових атомів буде однорідним.

Будемо розглядати випадок, коли довжина дифузійного пробігу точкових дефектів, що утворюються опроміненням (шлях, пройдений дефектом від створення до захоплення стоками), є меншою за відстань від квантової точки до поверхні, а також за відстань, на якій істотно змінюється інтенсивність радіації. У цьому разі задачу про розподіл магнітних іонів в околі квантової точки можна розглядати як задачу для нескінченного середовища при однорідному опроміненні. Концентрація магнітних іонів визначається рівнянням дифузії

$$\frac{\partial C_{Mn}}{\partial t} = \text{div} D_{Mn} \vec{\nabla} C_{Mn}, \quad (1)$$

де  $C_{Mn}$  - концентрація марганцю,  $D_{Mn}$  - коефіцієнт дифузії марганцю. У цьому рівнянні лише через коефіцієнт дифузії передається вплив температури та опромінення. Спочатку розглянемо розв'язок рівняння (1), не аналізуючи залежність  $D_{Mn}$  від опромінення. Для цього зручно ввести характерний час  $t_0$  такий, що  $\sqrt{D_{Mn} t_0} = 1$  нм, та відкладати час в одиницях  $t_0$ . Можна побачити, що при різних коефіцієнтах дифузії (тобто при різних температурах та інтенсивності опромінення) для заданої квантової точки розв'язок рівняння дифузії буде відрізнятися лише масштабом часу  $t_0$ .

За початкові умови взято такий розподіл марганцю, який має місце у квантовій точці CdTe/Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te: всередині деякої сфери концентрація марганцю дорівнює нулю, зовні – деякому значенню  $C_{Mn_0}$ . Граничні умови мають такий вигляд:  $C_{Mn} \rightarrow C_{Mn_0}$  при  $r \rightarrow \infty$ . Унаслідок сферичної симетрії задача розв'язувалась у сферичній системі координат. Типові розв'язки наведено на рис. 1.

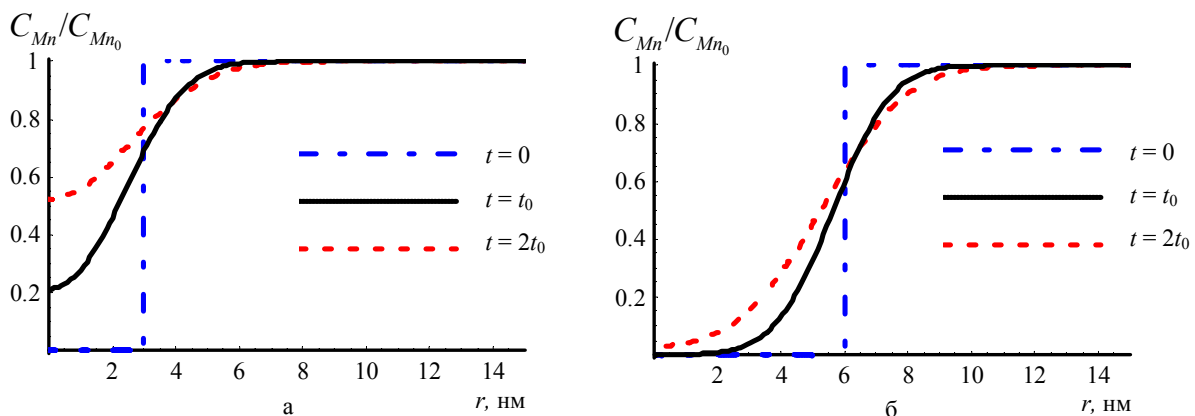


Рис. 1. Еволюція під опроміненням радіального розподілу концентрації марганцю у квантовій точці з вихідним радіусом  $R = 3$  нм (а) та  $R = 6$  нм (б) у різні моменти часу.

Зробимо числові оцінки коефіцієнта дифузії та характерного часу  $t_0$ . Існує два основних механізми радіаційного прискорення дифузії: дифузія за допомогою вакансій, створених опроміненням, та внаслідок вибивання атомів до міжвузлових положень. Дифузія за допомогою вакансій – це стрибки атомів з вузла ґратки у вакансію в сусідньому вузлі, для яких потенційний бар'єр суттєво менший, ніж для переходів по міжвузловим положенням на значну віддаль. З мікроскопічних уявлень про дифузію вакансій як процесу, при якому атоми переміщуються у вакансію в сусідньому вузлі, можна записати  $D_{Mn(vacancy)} = D_V C_V$ , де  $D_V$  - коефіцієнт дифузії вакансій (як було зазначено раніше, ми вважаємо однаковими коефіцієнти дифузії вакансій). Будемо вважати, що ця величина не залежить від опромінення, бо вважаємо концентрацію дефектів малою. Проте внаслідок опромінення у кристалі збільшується концентрація вакансій, тому коефіцієнт дифузії марганцю по вакансіях теж зростає: чим більше вакансій у кристалі, тим більше атомів марганцю по них дифундують.

Інший механізм дифузії, що прискорюється під дією опромінення, є дифузія міжвузлових атомів, що створені опроміненням. Концентрація таких дефектів мала, вони швидко захоплюються стоками, проте їхній коефіцієнт дифузії великий, і тому внесок міжвузлових атомів теж треба враховувати. Для дифузії атомів марганцю можна записати

$$\mathbf{j}_{Mn} = -D_{Mn} \vec{\nabla} C_{Mn}, \quad (2)$$

де  $C_{Mn}$  - концентрація атомів марганцю у міжвузлових положеннях;  $D_{Mn}$  - їхній коефіцієнт дифузії. Тут під градієнтом стоїть концентрація марганцю у міжвузлових положеннях, а у формулі (1) - загальна концентрація марганцю. Проте можна зауважити, що атоми у міжвузлових положеннях опиняються внаслідок вибивання їх з вузлів кристалічної ґратки. Якщо енергія частинок опромінення набагато більша порогової, то вибивання атомів відбувається не тільки внаслідок безпосередньої взаємодії з частинкою опромінення, а як результат складного перерозподілу енергії опромінення між атомами кристала, каскадів зіткнень, утворення вторинних вибитих атомів тощо. Тому можна вважати, що доля атомів марганцю в міжвузлових положеннях така сама, як і доля атомів марганцю у ґратці, тобто  $C_{Mn} / C_I = C_{Mn} / N_0$ , де  $C_I$  - загальна концентрація атомів у міжвузлових положеннях. Це співвідношення також підтримується процесами заміщення міжвузловими атомами атомів з ґратки. Із врахуванням цього, дифузію марганцю по міжвузлових положеннях можна

також описати формулою (1), якщо покласти  $D_{Mn(interstitial)} = D_{Mn} C_I$ . Як і у випадку з дифузією по вакансіях, ми не будемо розрізняти коефіцієнт дифузії атомів кадмію і марганцю, тобто покладемо  $D_{Mn} = D_{Icd} = D_I$ . Очевидно, що внаслідок опромінення більша кількість атомів марганцю опиняється в міжвузлових положеннях, і тому дифузійний потік марганцю збільшується.

З урахуванням обох механізмів коефіцієнт дифузії марганцю запишемо так:

$$D_{Mn} = D_V C_V + D_I C_I. \quad (3)$$

Така ж формула використовується в роботі [12].

Тут можна зазначити, що формула (1) є наближенням. У загальних формулах у багатокомпонентній системі дифузійний потік деякої величини записується як сума доданків, що містять не лише градієнт цієї величини, а й градієнти усіх інших величин. Це означає, що неоднорідний розподіл деякої іншої величини створює "додаткову тягучу силу" для величини, що розглядається. Однак у конкретних роботах головними виявляються ті чи інші доданки залежно від системи. Так, у даній роботі головним у вираженні для потоку марганцю є доданок, пропорційний градієнту марганцю. Dodanok з градієнтом кадмію у виразі для потоку марганцю малий, оскільки потенціали, створювані марганцем і кадмієм, близькі за величиною і, тому, неоднорідність потенціалу для марганцю, викликана неоднорідним розподілом кадмію, мала. Dodanok із градієнтом вакансій також малий, оскільки при однорідному опроміненні в даній системі розподіл вакансій однорідний. Таким чином, у даній системі максимальними за величиною є потоки марганцю та кадмію, які пропорційні, відповідно, градієнтам марганцю та кадмію.

Оцінки концентрацій вакансій та міжвузлових атомів у зразках під опроміненням проведемо, використавши типові кінетичні рівняння:

$$\frac{dC_V}{dt} = K_0 - \alpha_V \cdot (C_V - C_{V0}) - K_{rec} \cdot C_V \cdot C_I, \quad (4)$$

$$\frac{dC_I}{dt} = K_0 - \alpha_I \cdot C_I - K_{rec} \cdot C_V \cdot C_I. \quad (5)$$

$K_0$  описує створення дефектів опроміненням – кількість дефектів, створених за одиницю часу на одну комірку; коефіцієнти  $\alpha_I$  і  $\alpha_V$  визначають обернений час захоплення стоками міжвузлових атомів і вакансій відповідно;  $C_{V0}$  - концентрація вакансій при відсутності опромінення, останній доданок описує рекомбінацію вакансій

та міжвузлових атомів. У якості стоків можуть бути дислокації, комплекси атомів та міжвузлових атомів, різноманітні включення та інші дефекти. Для коефіцієнтів  $\alpha_I$  і  $\alpha_V$ , нехтуючи ефектом преференсу в захопленні точкових дефектів різного типу стоками, можна записати такі вирази:

$$\alpha_V = D_V \cdot k^2, \quad \alpha_I = D_I \cdot k^2, \quad (6)$$

$$K_{rec} = 4\pi R_{rec} \cdot (D_I + D_V). \quad (7)$$

Тут  $R_{rec}$  – радіус рекомбінації вакансій та міжвузлових атомів,  $k^2$  характеризує кількість поглинаючих стоків. Для дислокацій  $k^2$  дорівнює  $\rho$  – поверхневій густині дислокацій; для обмежених дефектів  $k^2 = 4\pi nR$ , де  $n$  – концентрація таких дефектів,  $R$  – радіус захоплення такими дефектами міжвузлових атомів та вакансій.

Будемо вважати, що стаціонарне значення концентрації вакансій та міжвузлових атомів під опроміненням встановлюється швидше, ніж відбувається розмиття квантової точки, тому для оцінки коефіцієнта дифузії будемо використовувати стаціонарні значення. У наближенні  $D_I \gg D_V$  та  $C_V \gg C_{V0}$  можна отримати такі стаціонарні значення:

$$D_I C_I = D_V C_V, \quad (8)$$

$$C_V = \left( \sqrt{1 + 2 \frac{K_0}{D_V \cdot \rho} \frac{8\pi R_{rec}}{\rho}} - 1 \right) / \left( \frac{8\pi R_{rec}}{\rho} \right). \quad (9)$$

Одразу можна побачити, що при  $C_V \gg C_{V0}$  в дифузії марганцю вакансії та міжвузлові атоми дають однаковий внесок ([12]). Можна також зазначити, що величина  $D_I$  (при  $D_I \gg D_V$ ) не ввійшла до виразу для концентрації вакансій та дифузії марганцю.

Зробимо числові оцінки коефіцієнтів. Літературних даних про коефіцієнти дифузії мало. При відсутності опромінення основним механізмом дифузії марганцю є рух по вакансіях ( $D_{Mn} = D_V C_{V0}$ ). Тому енергія активації дифузії марганцю  $E_{\alpha Mn}$  складається з енергії формування вакансії  $E_V$  і енергії активації дифузії вакансії  $E_{\alpha V}$  ( $E_{\alpha Mn} = E_V + E_{\alpha V}$ ). Згідно з [14], температурна залежність коефіцієнта дифузії марганцю в даній системі при відсутності опромінення описується співвідношенням  $D_{Mn} = D_{0Mn} e^{-E_{\alpha Mn}/kT}$  з параметрами  $D_{0Mn} = 37000 \text{ см}^2/\text{с}$ ,  $E_{\alpha Mn} = 2,8 \text{ еВ}$ . У роботах [15, 16] була встановлена енергія активації дифузії в 1,1 - 1,3 еВ. Тому в розрахунках будемо покладати  $E_{\alpha V} = 1,3 \text{ еВ}$ ,  $E_V = 1,5 \text{ еВ}$ .

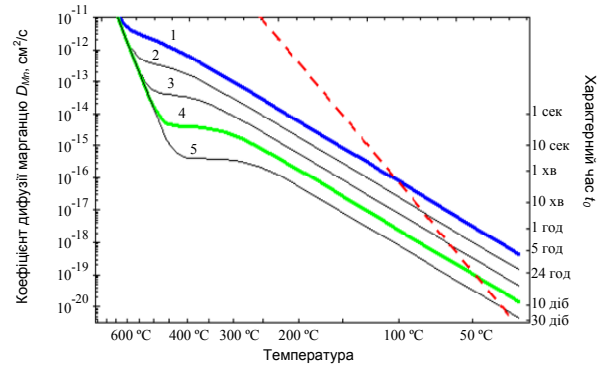


Рис. 2. Залежність коефіцієнта дифузії та характерного часу  $t_0$  від температури при різних інтенсивностях опромінення. Інтенсивність опромінення дорівнює, зна/с: 1 -  $10^{-4}$ ; 2 -  $10^{-5}$ ; 3 -  $10^{-6}$ ; 4 -  $10^{-7}$ ; 5 -  $10^{-8}$ . Пунктиром показана лінія концентрації вакансій  $C_V = 10^{-3}$ .

Результати розрахунку коефіцієнта дифузії та характерного часу  $t_0$  для різних температур та при різних інтенсивностях опромінення наведено на рис. 2. При великих температурах основний внесок до дифузії дають термічні дефекти. Можна виділити три якісно різних області. Розглянемо граничні випадки.

1. При високих температурах основним джерелом дефектів є не опромінення, а їхня термічна генерація. Тому  $C_V \approx C_{V0} = N_0 e^{-E_V/kT}$ ,  $D_{Mn} = D_{0Mn} e^{-E_{\alpha Mn}/kT}$ , тобто ті самі вирази, як і при відсутності опромінення.

2. При дещо нижчих температурах концентрація дефектів визначається опроміненням, проте рекомбінацією можна знехтувати й основним механізмом загибелі дефектів є їхнє захоплення на стоки. Тоді

$$C_V = \frac{K_0}{\alpha_V} = \frac{K_0}{D_V \cdot \rho}, \quad D_{Mn} = 2 \cdot D_V \cdot C_V = \frac{2K_0}{k^2}. \quad (10)$$

Тобто в даній області температур швидкість дифузії марганцю не залежить від швидкості дифузії точкових дефектів і від температури. Дійсно, у цій області температур концентрація дефектів обернено пропорційна коефіцієнту їхньої дифузії, тому добуток концентрації дефектів та коефіцієнта дифузії містить лише характеристики опромінення та стоків, проте не містить коефіцієнта дифузії.

3. Випадок низьких температур. При низьких температурах концентрація радіаційних дефектів зростає настільки, що рекомбінація міжвузлових атомів з вакансіями переважає над іншими механізмами виводу дефектів. У такому випадку можна заробити такі оцінки:

$$K_0 = 4\pi R_{rec} \cdot D_I \cdot C_I \cdot C_V = 4\pi R_{rec} \cdot D_V \cdot C_V^2, \quad (11)$$

$$C_V = \sqrt{\frac{K_0}{4\pi R_{rec} D_V}}, D_{Mn} = \sqrt{\frac{D_V K_0}{\pi R_{rec}}}. \quad (12)$$

У такому режимі радіаційно-стимульована дифузія марганцю йде з енергією активації, що дорівнює половині енергії активації дифузії вакансій.

При подальшому зниженні температури концентрація вакансій стає настільки великою, що застосування системи рівнянь (4) - (5) стає неможливим - стають істотними процеси взаємодії між дефектами та їхній вплив на спектр люмінесценції (штрихова крива на рис. 2, що відповідає концентрації вакансій у 0,001 на комірку).

З рисунка можна побачити, що характерний час  $t_0$  може змінюватися в широких межах: від декількох секунд при інтенсивності опромінення  $10^{-4}$  зна/с (типове опромінення електронами) та температурі 250 - 300 °С до десятків діб при інтенсивності опромінення  $10^{-7}$  зна/с (типове реакторне опромінення) та температурі 50 - 100 °С. А кімнатна температура вже виявляється достатньо низькою, і при кімнатній температурі внаслідок уповільнення процесів рекомбінації відбувається істотне накопичення дефектів, стають істотними процеси взаємодії між дефектами, що не враховують записані рівняння. Тому ми цю область температур не розглядаємо.

#### Магнітопольова залежність екситонних смуг у напівмагнітних квантових точках під опроміненням

Застосуємо отримані в попередньому параграфі результати щодо розподілу іонів марганцю у квантовій точці та її околі для розрахунку зміни електронних спектрів під опроміненням. Як уже зазначалось, у гетероструктурах  $Cd_{1-x}Mn_xTe/CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe$  більш широкозонні області  $Cd_{1-x}Mn_xTe$  формують бар'єрні області системи. За відсутності зовнішнього магнітного поля висоти потенціальних бар'єрів, що обмежують рух електрона та дірки, у такій структурі в наближенні середнього поля [7] визначаються середньою концентрацією іонів марганцю. Як показано в попередньому розділі, концентраційний профіль іонів марганцю в гетероструктурі істотно змінюється внаслідок опромінення. Якщо початковий радіальний розподіл концентрації марганцю в системі мав прямокутний профіль, то при опроміненні з часом він буде розмиватись (див. рис. 1). Відповідно і потенціальні ями в зоні провідності та валентній зоні для електрона і дірки будуть змінюватись від прямокутної сферичної до розмиті внаслідок проникнення домішок всередину квантової точки. Зміна глибини та ширини ям приводить до зміщення розмір-

квантованих рівнів частинок в ямах, а отже, і до зміни енергії екситонного переходу. Крім того, якщо дана структура знаходиться в магнітному полі, то глибини потенціальних ям істотно залежать від напруженості магнітного поля внаслідок гігантського спінового розщеплення країв зони провідності та валентної зони.

Будемо розглядати модель сферично-симетричних зон для електрона й дірки і проводити розрахунки для екситона з важкою діркою. Тоді гамільтоніан системи має вигляд

$$H = -\frac{\hbar^2 \Delta_e}{2m_e} - \frac{\hbar^2 \Delta_h}{2m_h} - \frac{e^2}{4\pi \varepsilon \varepsilon_0 |\vec{r}_e - \vec{r}_h|} + V_e(r_e, B, m) + V_h(r_h, B, n), \quad (13)$$

де перші три доданки описують рух вільного екситона Ванье в кристалі CdTe без домішок,  $V_e(r_e, B, m)$  та  $V_h(r_h, B, n)$  - сферично-симетричні потенціали квантової точки для електрона та дірки відповідно;  $\vec{r}_{e(h)}$  - положення електрона (дірки), відраховані від центра сферичної квантової точки. Вважалось, що ефективна маса електрона (дірки)  $m_{e(h)}$  та діелектрична проникність  $\varepsilon$  однакові в областях системи. Профіль потенціальних ям для електрона та дірки залежить від прикладеного магнітного поля  $B$ , проекції спінів електрона  $m = \pm 1/2$  та важкої дірки  $n = \pm 3/2$  на напрямок магнітного поля та розподілу відносної концентрації домішок марганцю  $C_{Mn}(r)$  у структурі (яка у свою чергу залежить від початкового радіуса квантової точки та від опромінення). Потенціали  $V_e(r_e, B, m)$  та  $V_h(r_h, B, n)$  мають дві складові. Перша пов'язана з різними значеннями електронної густини атома заміщення марганцю та атома кадмію, деформацією кристалічної ґратки поблизу атома заміщення тощо. Ця складова взаємодії носія з магнітними іонами не залежить від магнітного поля. Друга складова описує обмінну взаємодію і залежить від магнітного поля  $B$ . Як зазначалося вище, саме ця обмінна взаємодія зумовлює гігантське спінове розщеплення рівнів у зовнішньому магнітному полі. Таким чином, потенціали розмиті квантової точки для електрона та дірки можна записати у такому вигляді [17]:

$$V_e(r_e, B, s_z^e) = E_g^{CdTe} + (1 - Q_V) dE_g C_{Mn}(r_e) - C_{Mn}(r_e) N_0 \alpha \bar{S}_z^{Mn}(B) s_z^e, \quad (14)$$

$$V_h(r_h, B, s_z^h) = Q_V dE_g C_{Mn}(r_h) - C_{Mn}(r_h) \frac{N_0 \beta}{3} \bar{S}_z^{Mn}(B) s_z^h, \quad (15)$$

де  $E_g^{CdTe} = 1,606$  eВ - ширина забороненої зони CdTe [18];  $dE_g = 1,592$  eВ;  $Q_V = 0,4$  [18];  $N_0 \alpha = 0,22$  eВ;  $N_0 \beta = -0,88$  eВ обмінні інтеграли [7, 18]. Для розрахунку середнього значення проекції спіну магнітного іона  $\bar{S}_z^{Mn}(B)$  на напрямок магнітного поля використовувались емпіричні залежності, що враховують зменшення середньої намагніченості напівмагнітного напівпровідника внаслідок утворення кластерів антиферомагнітно упорядкованих спінів магнітних іонів [17].

За відсутності магнітного поля профіль потенціальної ями для електрона та дірки повторює профіль розподілу магнітних іонів  $C_{Mn}(r)$ . У магнітному полі глибини квантових ям для  $\sigma^+$ - та  $\sigma^-$ -компонент екситонного переходу будуть різними внаслідок розщеплення країв енергетичних зон. Окрім того, складна магнітопольова залежність середнього значення проекції спіна магнітного іона  $\bar{S}_z^{Mn}(B)$  спричинює суттєву зміну профілю потенціальної ями для носіїв у зовнішньому магнітному полі. Розподіл відносної концентрації домішок марганцю  $C_{Mn}(r)$  для квантових точок різного початкового радіуса був отриманий з розрахунків, наведених у попередньому розділі.

Для розрахунків енергії зв'язку екситону використовувався варіаційний метод з пробною хвильовою функцією основного стану екситону [19]

$$\Phi(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = N f_e(r_e) f_h(r_h) e^{-|\vec{r}_e - \vec{r}_h|/\lambda}, \quad (16)$$

де  $\vec{r}_{e(h)}$  - координата електрона (дірки);  $\lambda$  - варіаційний параметр;  $N$  - стала нормування;  $f_e(r_e)$  та  $f_h(r_h)$  - одночастинкові хвильові функції електрона та дірки відповідно. Для найнижчих станів електрона та дірки функції задовольняють рівнянню

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m_{e(h)}} \frac{d^2}{dr_{e(h)}^2} + V_{e(h)}(r_{e(h)}, B, m(n)) \right] R_{e(h)}(r_{e(h)}) = E_{e(h)} R_{e(h)}(r_{e(h)}), \quad (17)$$

де  $R_{e(h)}(r) = r f_{e(h)}(r)$ ;  $E_{e(h)}$  - енергія електрона (дірки) у квантовій точці.

Рівняння (17) розв'язувалось чисельно для потенціалів (14, 15) з використанням розподілу концентрації марганцю  $C_{Mn}(r)$ , знайденого в попередньому параграфі для різних значень початкового радіуса квантової точки. Для розрахунків використовувались ефективні маси електрона та важкої дірки  $m_e = 0,096m_0$  та  $m_h = 0,64m_0$  відповідно [18]; діелектрична стала  $\varepsilon = 9,7$ ,  $T = 4$  К.

Вибір хвильової функції у вигляді (16) виправданий, якщо відстань між розмірно-квантованими рівнями електрона (дірки) у квантовій точці значно перевищує енергію зв'язку екситону. Проте при розпливанні потенціалу квантової точки з часом відстань між збудженим і основним станами електрона (дірки) у квантовій точці повинна зменшуватись. Тому вибір хвильової функції у вигляді (16) для великих доз опромінення і точок великого радіуса стає непридатним. Для квантової точки з великим радіусом більш реалістичною є модель, в якій екситон як ціле рухається в неоднорідному полі. Для визначення критерію застосовності варіаційної функції (16) ми розрахували відстань між основним і першим збудженим одночастинковими рівнями у квантовій точці. Функція (16) справедлива, якщо ця відстань більша за енергію зв'язку екситону. Чисельний розв'язок рівняння (17) проводився для таких параметрів системи та доз опромінення, для яких виконується ця умова.

Рис. 3 показує, як впливає опромінення на положення екситонних смуг у квантових точках різної ширини  $R = 3$  нм, 6 нм (тут  $R$  - радіус сферичної квантової точки до опромінення). Розрахунки проводились для структур з відотною концентрацією іонів марганцю в глибині бар'єрних шарів  $x_0 = 0,2$ . Вважалося, що за відсутності опромінення інтерфейс квантової точки ідеально різкий. Для сферичної квантової точки з напівмагнітними бар'єрами розщеплення  $\sigma^+$ - та  $\sigma^-$ -компонент екситонного переходу в магнітному полі зростає із зменшенням радіуса точки, оскільки в цьому випадку хвильова функція екситону глибше проникає в напівмагнітні бар'єрні шари. При опроміненні магнітні іони проникають у квантову точку і енергія екситону зростає. Зміна положення енергетичного рівня екситону значною мірою визначається зміною положень розмірно-квантованих одночастинкових рівнів електрона та дірки (рис. 4) у квантовій точці.

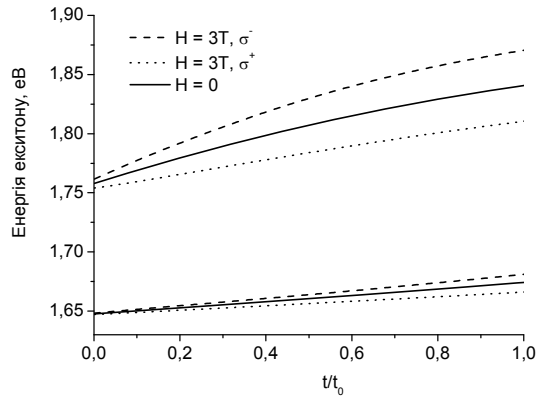


Рис. 3. Залежність енергії екситонних смуг для точок радіусом  $R = 3$  та  $6$  нм (суцільна лінія – за відсутності магнітного поля; пунктир –  $H = 3\text{ T}, \sigma^-$ -компонента; точки –  $H = 3\text{ T}, \sigma^+$ -компонента) від часу опромінення, температура  $T = 4\text{ K}$ .

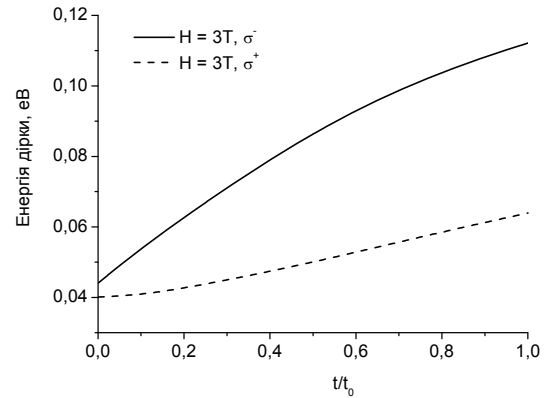


Рис. 4. Залежність енергії важкої дірки у квантовій точці  $R = 3\text{ nm}$  від часу опромінення, температура  $T = 4\text{ K}$ .

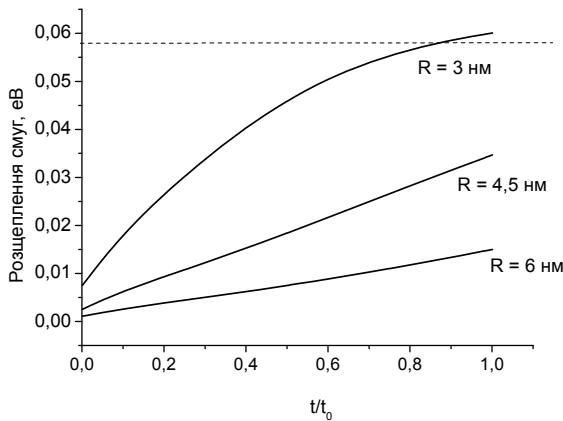


Рис. 5. Залежність розщеплення екситонних смуг для точок радіусом  $R = 3, 4,5$  і  $6$  нм від часу опромінення, температура  $T = 4\text{ K}$ ,  $H = 3\text{ T}$ . Пунктиром показано розщеплення екситонних смуг у неопроміненому об'ємному кристалі  $\text{Cd}_{0,8}\text{Mn}_{0,2}\text{Te}$  (з вмістом марганцю, рівним вмісту марганцю в бар'єрних шарах квантової точки), при тих самих значеннях температури та магнітного поля.

При опроміненні зростає і розщеплення екситонних смуг, оскільки всередині квантової точки домішки ефективніше взаємодіють з носіями заряду (рис. 5). При достатньо тривалому опроміненні концентрація магнітних іонів стає відмінною від нуля у всій квантовій точці, при цьому розщеплення смуг у точках може перевищувати за величиною розщеплення в бар'єрному напівмагнітному шарі (див. рис. 5). Даний ефект пов'язаний з утворенням антиферомагнітних кластерів у кристалах з досить високою концентрації магнітних іонів. Магнітні моменти магнітних іонів, об'єднаних у такі кластери, компенсують один одного, тому такі іони не роблять

внеску в намагніченість кристала. Як наслідок, у заданому магнітному полі намагніченість кристала  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  з відносною концентрацією іонів марганцю  $x = 0,1$  перевищує намагніченість кристала з  $x = 0,2$ , в якому більший вміст магнітних іонів компенсується більшою концентрацією кластерів. У нашому випадку концентрація марганцю в бар'єрних шарах квантової точки є високою ( $x_0 = 0,2$ ). Усередині квантової точки внаслідок дифузії середня концентрація марганцю може стати близькою до такої, що приводить до максимального розщеплення смуг у магнітному полі. Тоді розщеплення екситонних смуг у квантовій точці може перевищити відповідне значення для об'ємного кристала з вмістом марганцю, рівним вмісту марганцю в бар'єрних шарах квантової точки, що ми і бачимо на рис. 5. Подібний ефект досліджувався раніше у двошарових напівмагнітних структурах [17].

Відзначимо, що і положення екситонного рівня у квантовій точці, і величина розщеплення рівнів у магнітному полі суттєво залежать від початкового радіуса точки (рис. 6 і 7).

Зробимо зауваження. Очевидно при опроміненні крім перерозподілу іонів марганцю відбувається утворення різноманітних дефектів (комплексів вакансій, міжвузлових атомів, дислокацій), що впливають на положення рівнів у квантовій точці. Це може привести до додаткового зміщення рівнів та розширення екситонних смуг унаслідок флуктуацій кількості дефектів у різних квантових точках. Проте це не повинно впливати на розраховане в роботі розщеплення смуг, оскільки розщеплення визначається розподілом іонів марганцю, який визначався з урахуванням опромінення.

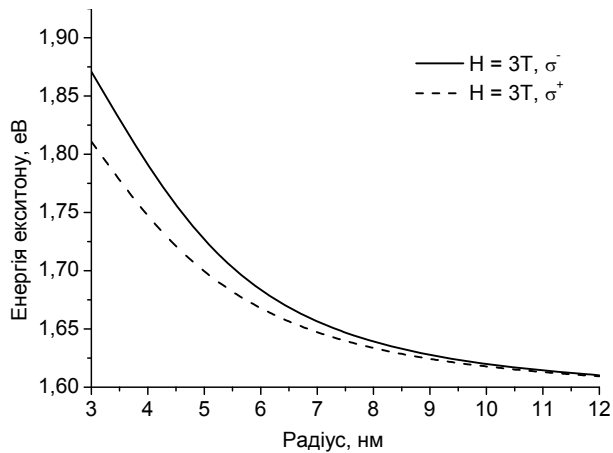


Рис. 6. Залежність енергії екситонних смуг від радіуса точки (час опромінення -  $t_0$ ; суцільна лінія -  $H = 3$  T;  $\sigma^-$ -компонента; пунктир -  $H = 3$  T,  $\sigma^+$ -компонента; температура  $T = 4$  K.)

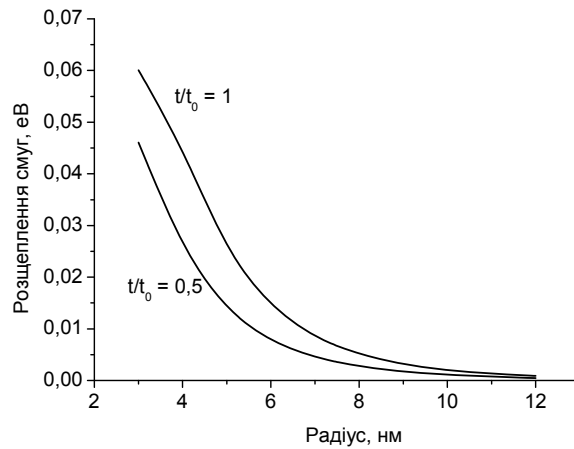


Рис. 7. Залежність розщеплення екситонних смуг від радіуса точки (часи опромінення  $t_0/2$  та  $t_0$ ), температура  $T = 4$  K.

### Висновки

Таким чином, у роботі розраховано перерозподіл іонів марганцю в напівмагнітному напівпровіднику з квантовою точкою під дією опромінення, яке приводить до радіаційно-стимульованої дифузії. Перерозподіл призводить до суттєвого зміщення та розщеплення рівнів екситонів у квантовій точці в магнітному полі. Явище

пов'язане з проникненням іонів марганцю у квантову точку та існуванням обмінної взаємодії між носіями зарядів і магнітними іонами. Явище може бути використане для регулювання параметрами квантових точок і визначення параметрів дифузії і радіаційно-стимульованих явищ.

Автори дякують С. М. Рябченку за корисні зауваження до роботи.

### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Withers N.J., Sankar K., Akins B.A. et al. Rapid degradation of CdSe/ZnS colloidal quantum dots exposed to gamma irradiation // *Appl. Phys. Lett.* - 2008. - Vol. 93. - P. 173101.
2. Guffarth F., Heitz R., Geller M. et al. Radiation hardness of InGaAs/GaAs quantum dots // *Appl. Phys. Lett.* - 2003. - Vol. 82. - P. 1941-1943.
3. Cress C.D., Hubbard S.M., Landi B.J. et al. Quantum dot solar cell tolerance to alpha-particle irradiation // *Appl. Phys. Lett.* - 2007. - Vol. 91. - P. 183108.
4. Sands D., Howari H. The kinetics of point defects in low-power pulsed laser annealing of ion-implanted CdTe/CdMnTe double quantum well structures. // *J. Appl. Phys.* - 2005. - Vol. 98. - P. 083506.
5. Howari H., Sands D., Nicholls J.E. et al. Excimer laser induced diffusion in magnetic semiconductor quantum wells. // *J. Appl. Phys.* - 2000. - Vol. 88. - P. 1373 - 1379.
6. Комаров А.В., Рябченко С.М., Терлецкий О.В. и др. Магнитооптические исследования и двойной оптико-магнитный резонанс экситонной полосы в CdTe: Mn // *ЖЭТФ.* - 1979. - Т. 73, № 2(8). - С. 608 - 618.
7. Gaj J.A., Planel R., Fishman G. Relation of magneto-optical properties of free excitons to spin alignment of Mn ions in CdMnTe // *Solid State Commun.* - 1979. - Vol. 29, No. 5. - P. 435 - 438.
8. Wojnar P., Suffczynski J., Golnik A. et al. Fabrication and luminescence properties of self-assembled CdTe quantum dots embedded in an MnTe matrix // *Phys. Rev. B.* - 2009. - Vol. 80, No. 19. - P. 195321.
9. Hundt A., Puls J., Henneberger F. Spin properties of self-organized diluted magnetic Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se quantum dots // *Phys. Rev. B.* - 2004. - Vol. 69, No. 12. - P. 121309-1 - 121309-4.
10. Верцімаха Г.В., Михайловский В.В., Сугаков В.Й. Деградація квантових ям та зміна енергетичних спектрів у напівпровідниках під дією опромінення // *Зб. наук. праць Ін-ту ядерних досл.* - 2005. - № 2(15). - С. 97 - 105.
11. Верцімаха Г.В., Михайловский В.В., Сугаков В.Й. Магнітна залежність екситонних спектрів у квантових ямах опромінених напівмагнітних напівпровідників // *Ядерна фізика та енергетика.* - 2008. - № 1(23). - С. 69 - 72.
12. Russell K.C. Phase stability under irradiation // *Progress in Materials Science* - 1984. - Vol. 28. - P. 229 - 434.
13. Furdyna J.K. Diluted magnetic semiconductors // *J. Appl. Phys.* - 1998. - Vol. 64. - P. R29 - R64.
14. Tonnie D., Bather G., Forchel A. et al. Photoluminescence study of strong interdiffusion in CdTe/CdMnTe quantum wells induced by rapid thermal annealing // *Appl. Phys. Lett.* - 1994. - Vol. 64. - P. 766 - 768.
15. Barcz A., Karczewski G., Wojtowicz T., Kossut J.



- Manganese diffusion in MBE-grown Cd(Mn) Te structures // *J. Crystal Growth*. - 1996. - Vol. 159. - P. 980 - 984.
16. *Grill R., Turjanska L., Franc J. et al.* Chemical Self-Diffusion in CdTe // *phys. stat. sol. (b)*. - 2002. - Vol. 229, No. 1. - P. 161 - 164.
17. *Gaj J.A., Grishaber W., Bodin-Deshayes C. et al.* Magneto-optical study of interface mixing in the CdTe-(Cd,Mn)Te system // *Phys. Rev. B*. - 1994. - Vol. 50, No. 8. - P. 5512 - 5527.
18. *Ossau W., Fiederling R., König B. et al.* Nondiagonal Transitions in Semimagnetic Quantum Wells with Parabolic and Half-Parabolic Confining Potentials // *Phys. Low-Dim. Struct.* - 1997. - Vol. 11/12. - P. 89 - 94.
19. *Kayanuma Y., Momiji H.* Incomplete confinement of electrons and holes in microcrystals // *Phys. Rev. B*. - 1990. - Vol. 41, No. 14. - P. 10261 - 110263.

**А. В. Верцимаха, В. В. Михайловский, В. И. Сугаков**

#### **ДЕГРАДАЦИЯ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК И ИЗМЕНЕНИЕ ИХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ СПЕКТРОВ В ПОЛУМАГНИТНЫХ ПОЛУПРОВОДНИКАХ ПОД ДЕЙСТВИЕМ ОБЛУЧЕНИЯ**

Исследованы размытие профиля потенциала для носителей заряда в квантовых точках в бинарных полупроводниках и смещение квантовых уровней электронов, дырок и экситонов под действием ядерного облучения. Размытие происходит из-за перераспределения атомов разного сорта между барьером и квантовой точкой вследствие радиационно-ускоренной диффузии. Показано, что в полумагнитных полупроводниках (например, в CdTe/(Cd, Mn)Te), в которых существует эффект гигантского магнитного расщепления экситонных уровней, перераспределение магнитных ионов под действием облучения приводит к существенному увеличению расщепления экситонных уровней в магнитном поле в квантовой точке.

*Ключевые слова:* радиационно-стимулированная диффузия, квантовые точки, полумагнитные полупроводники.

**G. V. Vertsimakha, V. V. Mykhaylovskyy, V. Y. Sugakov**

#### **DEGRADATION OF QUANTUM DOTS AND CHANGE OF THEIR ENERGY SPECTRA IN SEMIMAGNETIC SEMICONDUCTORS UNDER NUCLEAR IRRADIATION**

Spreading of the potential profile for the charge carriers in quantum dots in binary semiconductors and the shift of the quantum levels for electrons, holes and excitons under the nuclear irradiation has been investigated. The spreading occurs because of the redistribution of atoms of different kinds between the barrier and quantum dot due to radiation-enhanced diffusion. It is shown that in semimagnetic semiconductors (e.g. CdTe/(Cd, Mn)Te), in which a giant magnetic splitting of exciton levels exists, the redistribution of magnetic ions under irradiation causes significant increase in the splitting of exciton levels in a magnetic field in a quantum dot.

*Keywords:* radiation-enhanced diffusion, quantum dots, semimagnetic semiconductors.

Надійшла до редакції 04.04.11,  
після доопрацювання - 20.07.11.