

## ДЕФЕКТООБРАЗОВАНИЕ В ПРОЦЕССЕ АВТОЛОКАЛИЗАЦИИ ЭКСИТОНОВ В ТВЕРДОМ НЕОНЕ

*Е.В.Савченко, Ю.И.Рыбалко, И.Я.Фуголь*

Обнаружены новые особенности в спектрах катодолюминесценции твердого Ne и примесей Ag, Kг и Хе в Ne. Детальный анализ позволил выявить механизм образования дефектов в решетке Ne на стадии формирования одноузельных автолокализованных состояний.

Автолокализация (АЛ) экситонов в кристаллах инертных элементов (ИЭ) в одноузельные и двухузельные состояния установлена многочисленными экспериментами<sup>1</sup>. Одноузельная АЛ реализуется в кристаллах легких ИЭ и преобладает в Ne. Структура одноузельных состояний описывается моделью центра, образованного возбужденным атомом в микрополости (А-центром)<sup>1,2</sup>. Характер релаксации решетки в ходе АЛ находит отражение в больших стоксовых сдвигах  $S$  полос излучения и их близости к переходам в газе. В отличие от ШГК, где дефекты образуются на стадии распада АЛ состояний<sup>3,4</sup>, в кристаллах ИЭ теоретически предсказан механизм образования дефектов на стадии формирования АЛ состояний<sup>5</sup>. Настоящая работа посвящена экспериментальному выявлению такого механизма дефектообразования.

Исследовано влияние условий возбуждения, температуры и структуры образцов на распределение интенсивности в спектрах собственной и примесной (Ag, Kг, Хе) люминесценции А-центров в твердом Ne. Техника эксперимента описана в<sup>1,6</sup>. Основанием для использования растворов ИЭ в качестве модельных систем служит сходство динамики электронных возбуждений в чистых и примесных кристаллах<sup>1</sup>: оптические спектры примесных и собственных А-центров в Ne близки между собой (рис. 1, 2, 3). Они содержат серии полос, коррелирующих с электронными переходами в свободном атоме из состояний  $^3P_2$ ,  $^3P_1$  и  $^1P_1$  в  $^1S_0$ . Положение центров тяжести измеренных полос согласуется с результатами опытов по фото-<sup>7</sup> и рентгеновскому<sup>8</sup> возбуждению. Высокое разрешение позволило нам наблюдать тонкую структуру полос и обнаружить новые максимумы излучения. На основании анализа спектров Ne и растворов предложено новое отнесение всех измеренных полос.

Спектры твердой фазы богаче газовых. Поэтому невозможно отождествить каждую из компонент тонкой структуры с переходами в свободном атоме, как принято в<sup>7,8</sup>. Каждому переходу в спектре люминесценции А-центров, расположенных в объеме образца, отвечает харак-

терный дублет, компоненты которого обозначены индексами "1" и "2". Они значительно уже соответствующих максимумов поглощения и их полуширина  $\delta$  возрастает от  $\delta = 0,05$  эВ для собственных *A*-центров в Ne до  $\delta = 0,09$  эВ для Xe в Ne. Матричные сдвиги *D* дублетов малы, для "1" компонент  $D \ll S$ . У дублетов имеются спутники  $a_d$  и  $b_d$ , которые мы связываем со свечением *A*-центров вблизи дефектов. В отличие от линий "d", компоненты "1" и "2" выделяются стабильностью поведения в спектре. Они интенсивны в низкотемпературных спектрах при возбуждении медленными электронами, т.е. в условиях, когда дефекты заморожены, а энергии электронов недостаточно для прямого выбивания атома Ne из узла решетки. Изотермический отжиг образцов при 10 К практически не изменяет интенсивность дублета  $I_1$  и  $I_2$ . Указанные факты свидетельствуют о том, что обе компоненты дублетов отвечают собственным электронным возбуждениям *A*-центров в решетке. Однако "радиационное" поведение их различно. Для компоненты "2" переход от допороговых энергий возбуждения к режиму генерации дефектов не влияет на ее интенсивность  $I_2$  (рис. 2). Нет разгорания  $I_2$  и с увеличением дозы облучения, что доказывает бездефектный характер центров, ответственных за излучение компонент "2". Компоненты "1" разгораются при облучении электронами в режиме генерации пар Френкеля, с ростом дозы облучения их интенсивность увеличивается с выходом на насыщение (рис. 2), как свойственно дефектным линиям ( $a_d, b_d, c$ ). Эти результаты указывают на связь "1" — компонент с точечными дефектами.

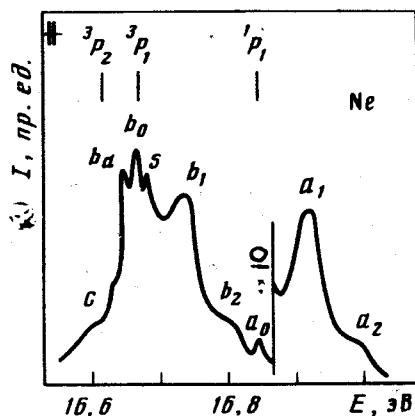


Рис. 1

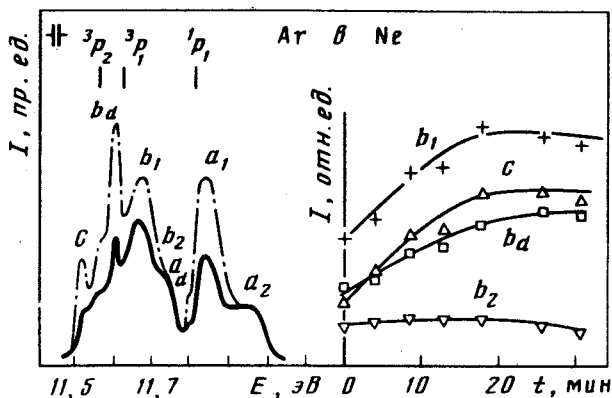


Рис. 2

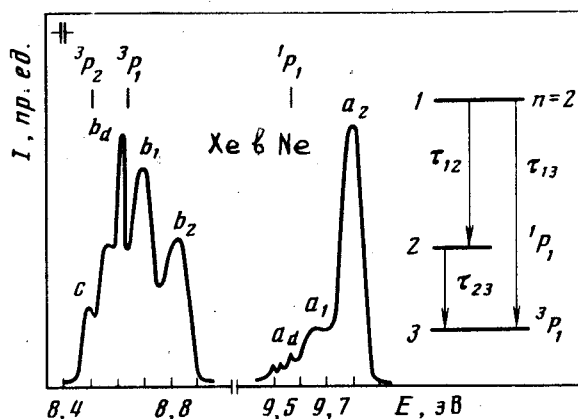


Рис. 3

Рис. 1. Спектр люминесценции чистого неона при 5 К: *s* — поверхностная полоса

Рис. 2. Спектр люминесценции примесных центров 0,01% Ag в Ne. Сплошная кривая соответствует энергии возбуждения 500 эВ, штрих-пунктирная — 2000 эВ. В правой части — зависимость интенсивности различных компонент спектра от дозы облучения.

Рис. 3. Спектр люминесценции примесных центров 0,01% Xe в Ne и схема релаксации.

Вся совокупность фактов естественно объясняется предложенным в <sup>5</sup> механизмом дефектообразования в процессе АЛ. Дублетная структура полос излучения, по нашему мнению, обусловлена существованием двух различных конфигураций АЛ состояния, разделенных барьером, — бездефектной и включающей дефект, образованный в ходе АЛ. Компоненты "2" отра-

жают начальную стадию АЛ, которая соответствует появлению упругих напряжений вокруг полости, образованной возбуждением. В чистом Ne положение компонент "2" совпадает с расчетным<sup>9,10</sup>. Компоненты "1" соответствуют заключительной стадии АЛ с релаксацией упругих напряжений за счет пластического расширения полости путем внедрения межузельных атомов в кристаллическое окружение А-центров. Увеличение размера полости при этом приводит к сдвигу максимумов "1" в сторону низких энергий, приближая его к переходу в газе. Вероятность образования дефектов велика, поскольку выигрыш в энергии при АЛ намного превосходит энергию связи и распределяется по небольшому числу атомов ближайших координационных сфер. Вследствие того, что пластическая деформация связана с преодолением атомами потенциальных барьеров, АЛ состояния с участием дефектов будут формироваться за времена  $\tau_f \gg \omega_D^{-1}$ ,  $\omega_D$  — дебаевская частота.

Естественно ожидать, что число центров, в окрестности которых решетка успеет деформироваться со встраиванием межузельных атомов, будет зависеть от времени жизни возбуждения и расти с его увеличением. Развитие процесса дефектообразования во времени можно проследить, сопоставляя отношение интенсивностей "1" и "2" компонент в последовательности электронных переходов в А-центрах. В условиях каскадного заселения состояний деформация решетки может развиваться в ходе релаксации по электронным уровням. При этом различные состояния, разделенные между собой процессами безызлучательной релаксации, играют роль своеобразных зондов, отражающих состояние системы в различные моменты времени. Реальность обсуждаемого механизма подтверждается корреляцией между временами безызлучательного заселения данного уровня  $\tau_p$  и отношением  $I_1/I_2$ . Согласно<sup>7</sup>, основная задержка в процессе релаксации происходит на стадии заселения уровней  $^1P_1$  и  $^3P_1$ . Исходя из простой трехуровневой схемы, можно оценить скорости заселения  $^1P_1$  (2) и  $^3P_1$  (3) состояний: они будут пропорциональны  $\{\tau_p^{(2)}\}^{-1} \sim (\tau_{12})^{-1}$  и  $\{\tau_p^{(3)}\}^{-1} \sim (\tau_{13})^{-1} + (\tau_{12})^{-1}\tau_{20}(\tau_{23})^{-1}$ , соответственно. Согласно нашему предположению  $I_1/I_2 \sim \tau_p$  и для переходов с уровней 2 и 3 должно выполняться соотношение:

$$\frac{I_2^{(2)}}{I_1^{(2)}} : \frac{I_2^{(3)}}{I_1^{(3)}} = \frac{(\tau_{12})^{-1}}{(\tau_{13})^{-1} + (\tau_{12})^{-1}\tau_{20}(\tau_{23})^{-1}} \quad (1)$$

Измеренное в данной работе отношение  $I_2^{(2)}/I_1^{(2)} : I_2^{(3)}/I_1^{(3)}$  в системе Ag/Ne составляет  $\cong 0,8$ , в хорошем согласии с оценкой  $\tau_p^{(3)}/\tau_p^{(2)} \cong 0,87$  по данным<sup>7</sup>. Справедливость предположения подтверждается выполнением (1) при изменении  $\tau_p$  с переходом к другой системе. Так, для системы Xe/Ne, в которой  $\tau_{13}, \tau_{23} \gg \tau_{12}$ <sup>7</sup> оценка дает  $\tau_p^{(3)}/\tau_p^{(2)} \cong 22$ . В соответствии с этой величиной находится измеренное нами отношение  $I_2^{(2)}/I_1^{(2)} : I_2^{(3)}/I_1^{(3)} \cong 20$ . Убедительное свидетельство определяющего влияния  $\tau_p$  на величину  $I_1/I_2$  дают опыты по изменению скорости релаксации электронного возбуждения. Резкое увеличение скорости релаксации при "локальном фазовом переходе" в Ne вблизи 10,5 К<sup>11</sup>, эквивалентное уменьшению  $\tau_p$  влечет за собой падение  $I_1/I_2$ .

#### Литература

1. Fugol I. Ya. Adv. in Phys., 1978, 27, 1.
2. Jortner J., Koch E.E., Schwentner N. Preprint DESY F41, 1983.
3. Lushchik Ch.B. In: Excitons; ed. by Rashba E.I. and Sturge M.D., North-Holland Pub. Comp. Amsterdam, 1982, 506.
4. Williams R.T. Semiconduct. and Insul., 1978, 3, 251.
5. Kusmartsev F.V., Rashba E.I. Czech. J. Phys., 1982, B32, 54.
6. Григорашенко О.Н., Рыбалко Ю.И., Савченко Е.В., Фуголь И.Я., ФНТ, 8, 886.
7. Hahn U., Schwentner N. Chem. Phys., 1980, 48, 53.
8. Schuberth E., Creuzburg M. Phys. Stat. Sol. (b), 1978, 90, 189.
9. Kunsch P.L., Coletti F.J. J. Chem. Phys., 1979, 70, 726.

10. *Ratner A.M., Tarasova E.I.* Phys. Stat. Sol. (b), 1984, 124, 249.

11. *Рыбалко Ю.И., Савченко Е.В., Фуголь И.Я.*, ФНТ, 1985, 11, 256.

Физико-технический институт низких температур  
Академии наук Украинской ССР

---

Поступила в редакцию  
23 июля 1985 г.