

ДИФФУЗИЯ ЭКСИТОНОВ И ПЕРЕНОС ЭНЕРГИИ В КРИОКРИСТАЛЛАХ КСЕНОНА, КРИПТОНА И АРГОНА

И.Я.Фуголь, А.Г.Белов, Е.И.Тарасова

Проанализирована диффузионная кинетика свободных экситонов в криокристаллах Хе, Кг и Аг. Описаны эксперименты, доказывающие основную роль "горячих" экситонов в процессах переноса энергии возбуждения.

Одновременное существование свободных и автолокализованных экситонов значительно усложняет картину переноса электронной энергии в решетках Хе, Кг и Аг и делает ее нетри-

виальной по сравнению с другими кристаллами ^{1, 2}. В экспериментах ³ при изучении концентрационных зависимостей сенсibilизированной люминесценции в матрице Кг были получены убедительные доказательства того, что при низких концентрациях примеси $c \lesssim 0,1\%$ энергия переносится свободными экситонами в процессе их диффузионного движения. Однако остался нерешенным актуальный вопрос, какая группа экситонов дает основной вклад в перенос энергии — тепловые или горячие (нетермализованные). Проанализировав диффузионную кинетику свободных экситонов теоретически, мы поставили эксперимент, который дал ответ на этот вопрос.

Движение экситонов в регулярной решетке контролируется рассеянием на акустических фононах, причем малым безразмерным параметром рассеяния является $\lambda = 4m^2 C^2 / 3\pi\rho s\hbar^3$ ⁴, где m — масса экситона, C — деформационный потенциал, ρ — плотность, s — скорость звука в кристаллах. Прямое вычисление диффузионного времени экситона при однофононном рассеянии — τ_{ph} — для произвольных квазиимпульсов k и температур T ¹ приводит к результату

$$\hbar / \tau_{ph} = \frac{6}{5} \lambda \epsilon_k [1 + \psi(z)], \quad \psi(z) = \frac{10}{z^5} \int_0^z \frac{x^4 dx}{\exp x - 1}. \quad (1)$$

Здесь ϵ_k и v_k — энергия и скорость экситона в зоне, $z = 2msv_k / T$. Коэффициент диффузии вводится по формуле $D(k, T) = \frac{1}{3} \tau_{ph} v_k^2$. При малых z основной вклад в (1) дает интеграл $1 + \psi(z) \simeq 5/2z$, и мы получаем

$$\hbar / \tau_{ph}(k, T) = \frac{3}{4} \lambda T \frac{v_k}{s}, \quad l_{ph}(T) = \frac{4}{3} \frac{\hbar s}{\lambda T}. \quad (2)$$

Соотношение (2) приводят к линейной зависимости $D(z)$ при $z < 1$

$$D(z) = D_0 \frac{2}{5} z, \quad D_0 = \frac{5}{9} \frac{\hbar}{\lambda m}. \quad (3)$$

При больших z функция $\psi(z)$ мала. Это означает, что вклад индуцированного рассеяния на тепловых фононах по параметру $1/z < 1$ является несущественным в сравнении со спонтанным излучением. В этом случае коэффициент диффузии не зависит от T и k

$$D^* = D_0 = \text{const}(k, T). \quad (4)$$

На рис. 1 схематически представлена зависимость коэффициента диффузии от двух переменных: v_k и T . Прямая $z = 1$ разделяет плоскость (v_k, T) на две области, соответствующие асимптотикам (3) и (4). В этой же плоскости дана температурная зависимость тепловой скорости $v_T = (3T/m)^{1/2}$, которая пересекается с прямой $z = 1$ в точке $T_c^0 = 12ms^2 \lesssim 6\text{ К}$ ¹. При $T > T_c^0$ температурный ход диффузии вдоль кривой v_T соответствует известной зависимости $D(T) \propto T^{-1/2}$ для термализованных квазичастиц. Коэффициент диффузии горячих экситонов с характерной скоростью v_k и энергией ϵ_k , в соответствии с (3) и (4), изменяет характер своей зависимости от T в области температуры

$$T_c(\epsilon_k) \simeq 2msv_k = 2(2ms^2\epsilon_k)^{1/2}. \quad (5)$$

Выводы этого анализа позволили естественно и последовательно интерпретировать эксперименты по температурной зависимости сенсibilизированной люминесценции.

Интенсивность люминесценции полосы примесного центра определяется числом участвующих в переносе возбуждения экситонов $N(\epsilon_k)$ и их коэффициентом диффузии: $I_{imp} \propto N(\epsilon_k) D_{ph}(T, \epsilon_k)$. Функция распределения экситонов по зоне для энергий $\epsilon_k \gg T$ имеет слабую температурную зависимость, поэтому $I_{imp}(T)$ практически контролируется диффузией. Изучался перенос энергий в кристаллах Хе, Кг и Аг, содержащих примесь O_2 с низкой концентрацией ($c \lesssim 10^{-3}\%$), так что всегда длина свободного пробега по отношению к рассеянию на примеси была больше соответствующей длины для рассеяния на фоно-

нах $I_{imp} \gg I_{ph}$. Возбуждение экситонов проводилось пучком электронов с энергией $E \approx \approx 0,5$ кэВ и низкими плотностями тока, чтобы исключить создание радиационных дефектов. Примесь O_2 в инертных матрицах дает разнообразный набор центров излучения — молекулярные возбуждения (полосы Герцберга) и ряд эксимерных комплексов $(RO)^*$, где R — атом инертного элемента. Спектр примесного и собственного излучения систем $O_2 - R$ охватывает широкий диапазон длин волн от вакуумного ультрафиолета до ИК области, поэтому измерения спектров выполнены на двух спектральных приборах. Все условия возбуждения и регистрации спектров оставались строго фиксированными во всей серии экспериментов.

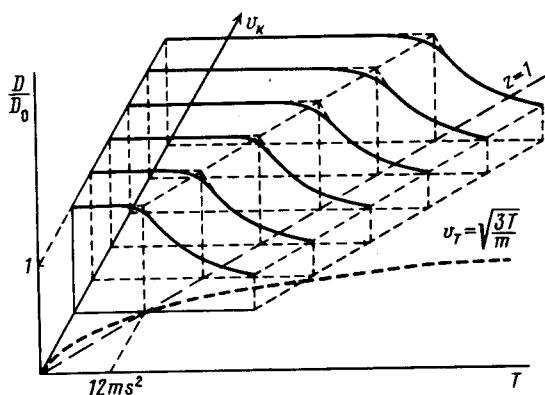


Рис. 1. Зависимость коэффициента диффузии от скорости свободных экситонов и температуры кристалла

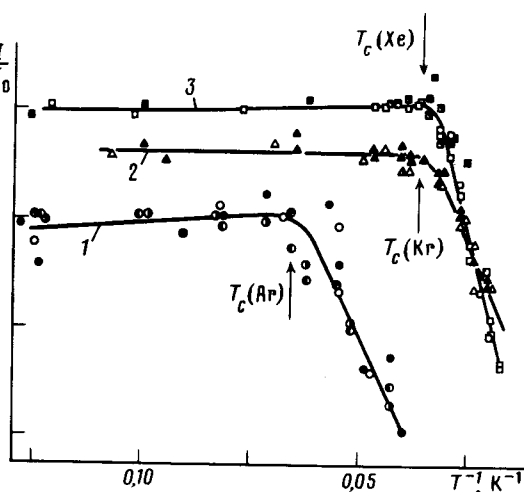


Рис. 2. Температурные зависимости интенсивностей примесных полос люминесценции в решетках: 1 — Ar, 2 — Kr, 3 — Xe

На рис. 2 приведены зависимости относительной интенсивности люминесценции примесных центров от температуры для трех матриц: Xe, Kr и Ar. Наблюдается постоянство I_{imp} в широком интервале T , а при некоторых температурах, превосходящих характерную T_{exp}^c , происходит резкое уменьшение интенсивности с ростом температуры по закону $\sim T^{-1}$. Подчеркнем, что кривые $I_{imp}(T)$ для различных типов примесных состояний оказались в каждой матрице идентичными. Замена одной матрицы на другую сопровождалась изменением величины T_{exp}^c . Небольшое смещение области излома кривых (в сторону уменьшения T_c) наблюдается в образцах с большим содержанием дефектов.

Переход к зависимости $I_{imp} \sim T^{-1}$ происходит при температуре $T_c \gg T_c^0$, поэтому согласно (5) следует предположить, что в переносе электронной энергии участвуют горячие экситоны с $v_k \gg v_T$. Этот вывод, по всей видимости, тесно связан с замедленной термализацией горячих экситонов в кристаллах, где ширина зоны $2B$ существенно превышает характерную энергию фононов: $2B \gg \bar{\omega}$. Другим важным моментом для объяснения особой роли горячих экситонов в кристаллах является самозахват свободных экситонов. Как показано в ⁵, при низких температурах вероятность самозахвата должна быть максимальной в области энергий порядка высоты автолокализационного барьера H . Процессы автолокализации приводят к значительному уменьшению числа экситонов с энергиями ϵ_k , меньшими высоты автолокализационного барьера: $\epsilon_k \lesssim H$, поэтому в перенос энергии должны давать основной вклад "горячие" квазичастицы с $\epsilon_k > H$. Это подтверждается экспериментально. Действительно, если использовать величины H из ¹, то по формуле (5) с учетом $\epsilon_k \gtrsim H$ определим температурные области "излома" кривых: $T_c(Xe) \gtrsim 22$ К, $T_c(Kr) \gtrsim 21$ К и $T_c(Ar) \gtrsim 13$ К. Эксперимент дает: $T_{exp}^c(Xe) \approx 30$ К, $T_{exp}^c(Kr) \approx 30$ К и $T_{exp}^c(Ar) \approx 17$ К.

Литература

1. Фуголь И.Я. Кн.: Криокристаллы. Под ред. Веркина Б.И. и Прихотько А.Ф., кн. : Наукова Думка, 1983.
2. Schwentner N., Koch E.-E., Jortner J. Electronic Excitation in Condensed Rare Gases. Springer – Verlag, Berlin, 1985.
3. Фуголь И.Я., Белов А.Г., Юртаева Е.М., Свищев В.Н. ФНТ, 1986, 12, 67.
4. Рашба Э.И., Кн.: Экситоны. Под ред. Рашба Э.И., Стерджа М.Д. М.: Наука, 1985.
5. Ioselevich A.S., Rashba E.I. Solid State Comm., 1985, 55, 705.

Физико-технический институт низких температур
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию
22 апреля 1986 г.