

ВИДИМАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ДЕСОРБИРОВАННЫХ АТОМОВ В РЕЗУЛЬТАТЕ ДИНАМИКИ АВТОЛОКАЛИЗОВАННЫХ ЭКСИТОНОВ НЕОНА

И.Я. Фуголь, А.Г. Белов, В.Н. Самоваров,
В.Н. Свищёв, В.М. Журавлёв

Измерены амплитудные и фазовые характеристики спектров катодолюминесценции твердого неона в видимой области. Показано, что серия узких линий связана с автолокализацией p -экситонов вблизи поверхности кристалла и последующей десорбцией возбужденных атомов в вакуум.

Спектр излучения твердого неона в области 585 – 750 нм обнаруживает горячую люминесценцию, не имеющую аналогов в других кристаллах. Спектр имеет вид многокомпонентной серии (26 членов), причем каждая компонента содержит узкую линию и широкую полосу. Всю серию удастся сопоставить с излучательными переходами между высоковозбужденными уровнями атома неона $2p^5 3p_i \rightarrow 2p^5 3s_k$ ($i = 1 - 10, k = 1 - 4$), но природа и механизмы формирования линий и полос остаются предметом дискуссий^{1, 2}. С целью выяснения этих вопросов в данной работе методом катодолюминесценции проведены комплексные исследования спектров в зависимости от энергии электронов, толщины и температуры образцов, роли примесей и др. Кроме этого, фазово-модуляционным методом были изменены времена затухания катодолюминесценции. При модуляции электронного пучка частотой $\omega = 6,78 \cdot 10^7$ Гц определялся фазовый угол между возбуждением и свечением. Измеренная фаза включала времена заселения τ^P и время радиационного перехода τ^R люминесцирующего состояния.

На рис. 1 показан участок спектра твердого неона, снятый с разрешением $\sim 0,3 \text{ см}^{-1}$. Каждому $3p_i \rightarrow 3s_k$ переходу соответствует узкая линия с полушириной менее $0,3 \text{ см}^{-1}$ и полоса с полушириной $\sim 60 \text{ см}^{-1}$. Положения всех линий с точностью $\pm 0,3 \text{ см}^{-1}$ совпа-

дают с частотами свободного атома, а все полосы смещены к меньшим энергиям на $\sim 60 \text{ см}^{-1}$. Распределение интенсивностей в серии линий и полос резко отличается от спектра газа — усиливаются переходы из низлежащих $3p_i$ -термов. Наиболее яркая люминесценция возникает на полосе 706 нм и линии 703 нм из нижайшего $3p[1/2]_1$ уровня. Отличие распределения от газового указывает, что серии связаны с возбуждением твердого, а не газообразного неона. Об этом свидетельствуют также зависимости интенсивностей линий и полос от толщины образцов (рис. 1, б), от температуры, количества примесей и др. С ростом температуры интенсивности всех линий падают, а полос усиливаются.

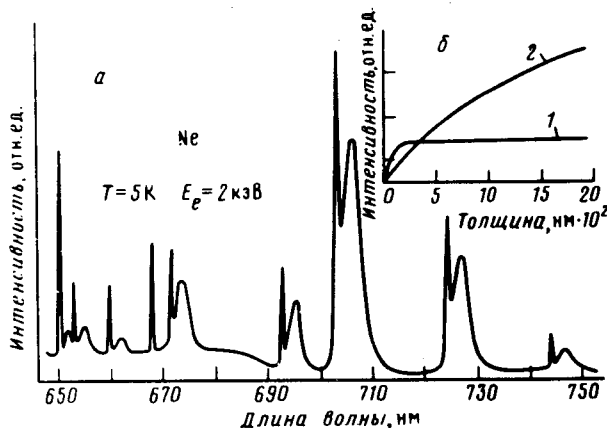


Рис. 1

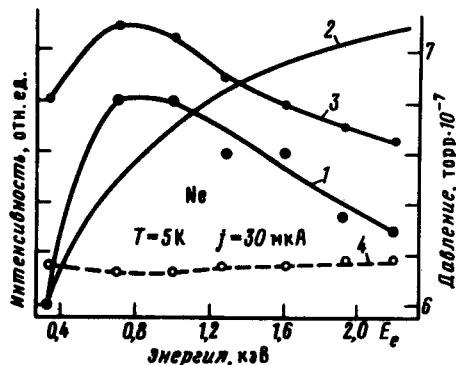


Рис. 2

Рис. 1. а — Спектр видимой катодолуминесценции твердого неона в области 650 — 750 нм. $T = 5 \text{ К}$, $E_e = 2 \text{ кВ}$; б — зависимость интенсивности линии 703 нм (1) и полосы 706 нм (2) от толщины образца

Рис. 2. Зависимость интенсивности линии 703 нм (1) и полосы 706 нм (2) от энергии возбуждающих электронов. Кривая 3 показывает изменение давления в объеме экспериментальной камеры при увеличении E_e . Кривая 4 дает контрольное давление в каждом эксперименте при отсутствии электронного возбуждения образца

Анализ изменения интенсивностей линий и полос при увеличении толщины образцов (рис. 1, б) и энергии возбуждающих электронов (рис. 2), а также фазы в зависимости от плотности электронов (рис. 3) показывает, что заселение линий и полос происходит в различных областях кристалла. Как видно, с ростом толщины интенсивности возрастают и постепенно выходят на насыщение. Однако, серия линий доминирует при малых толщинах, когда велика роль поверхности, а серия полос — в толстых образцах, когда возрастает роль объема. Аналогично, линии очень сильны при малых энергиях электронов (малые глубины проникновения), а полосы неуклонно усиливаются с ростом E_e и доминируют в спектре как только энергия E_e превышает максимум энергетических потерь в твердом неоне, равный $E_e^{max} \approx 800 - 1000 \text{ эВ}$ (при этом максимум возбуждения располагается в объеме образца).

Фазовые измерения были проделаны на 8 линиях и на полосе 706 нм при энергиях электронов 450 эВ. Поскольку радиационное время τ^R и время заселения τ^P связаны с фазой соотношением $\varphi = \arctg \omega\tau^R + \arctg \omega\tau^P$, интересно проанализировать разности фаз для нескольких линий, а также линии и полосы. На рис. 3 приведены графики $\Delta\varphi_1$ между линиями 703 и 640 нм, а также $\Delta\varphi_2$ — между полосой 706 и линией 703 нм в зависимости от плотности тока. Как видно $\Delta\varphi_1$ не зависит от тока и такое поведение характерно для разности фаз любых линий. Для них время заселения оказалось одинаковым, а значения $\Delta\varphi_1$ включали только различие радиационных времен. Совсем иная картина для $\Delta\varphi_2$, которая оказалась зависимой от плотности электронов в образце. Это значит, что в каскаде заселения следует учитывать время рекомбинации $\tau^R \approx (\alpha n)^{-1}$, где α — коэффициент

рекомбинации, а n — плотность электронов в образце. В наших измерениях $\tau_{706}^P > \tau_{703}^P$, или $(\alpha n)_{706} < (\alpha n)_{703}$, т. е. плотность электронов в области кристалла, где формируются линии больше, чем в той области кристалла, где образуются центры свечения полосы 706 нм. Поскольку в данных экспериментах использовались электроны малых энергий $E_e < E^{max}$, то электронная плотность должна быть выше около поверхности. Таким образом, совокупность измерений доказывает, что заселение центров свечения линий происходит вблизи поверхности, а полос — в объеме кристалла.

Времена жизни всех измеренных линий с точностью до ± 2 нс совпали с газовыми значениями для атома неона. Совместно с фактом полного совпадения частот всех линий спектра катодоллюминесценции с газовыми, это свидетельствует, что излучение происходит вне поверхности кристалла, т. е. возбужденный атом десорбируется в вакуум и там излучает. Радиационное время жизни объемных центров можно оценить, экстраполируя величину $\Delta\varphi_2$ к нулевому значению тока. Для полосы 706 нм имеем $\tau_{706}^R = 24$ нс, которое на 6 нс меньше значения $\tau_{703}^R = 30$ нс для десорбированного атома. Эти данные подтверждают, что прилегающая к линии полоса обусловлена тем же переходом, но излучение происходит в объеме кристалла.

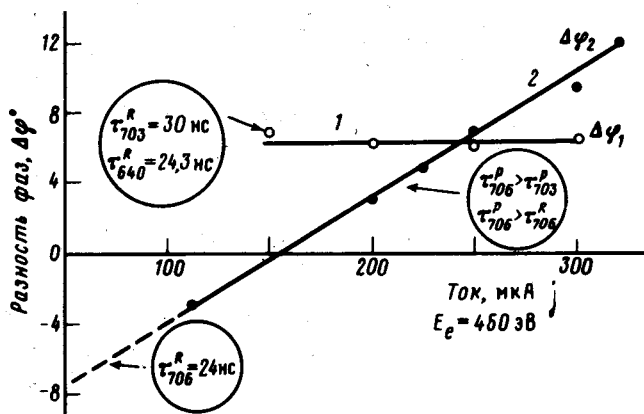


Рис. 3. Зависимость разности фаз $\Delta\varphi$ от тока электронной пушки j . $T = 5$ К, $E_e = 450$ эВ. 1 — $\Delta\varphi_1 = \varphi_{703} - \varphi_{640}$; 2 — $\Delta\varphi_2 = \varphi_{706} - \varphi_{703}$

Связь всей серии линий с десорбированными атомами неона подтвердилась в экспериментах, когда одновременно регистрировались показания давления в камере с образцом и изменение интенсивности линий в зависимости от энергии электронов (рис. 2). Была обнаружена четкая корреляция между немонотонными зависимостями величины давления и интенсивностью линий от E_e . В области малых энергий, $E_e < 1$ кэВ, давление в камере растет с ростом E_e за счет десорбции и одновременно наблюдается усиление линий. При $E_e \gtrsim 1$ кэВ электрон-ионная плотность вблизи поверхности образца начинает падать, соответственно падает скорость десорбции и, как следствие, давление в камере и интенсивность линий. Заметим, что интенсивность широких полос при этом продолжает возрастать.

Приведенные данные однозначно показывают, что исследуемая десорбция имеет нетепловой характер и не обусловлена эрозией поверхности в результате электронного удара. Линейчатому излучению из высокоэнергетических $3p$ -состояний неона, как это видно по ряду особенностей (главное — сдвиг по отношению к спектру возбуждения), предшествует процесс сильного взаимодействия экситонов с решеткой. Поэтому естественно связать наблюдаемую десорбцию атомов с быстрой автолокализацией p -экситонов вблизи поверхности, аналогично тому, как происходит поверхностная автолокализация и последующая десорбция из состояний s -экситонов в неоне^{3,4}. Непротиворечивая картина автолокализационной динамики $3p_i$ -состояний Ne следующая. В ходе электронного возбуждения кристаллов возникают электронно-дырочные пары. При их дальнейшей рекомбинации возникают p -экситоны. Развивающаяся автолокализация p -экситонов на поверхности сопровождается выделением энергии $\sim 0,6$ эВ, существенно превышающей энергию связи атома с ре-

шеткой. Поэтому в процессе автолокализации на поверхности Zr -атомы утрачивают связь с решеткой и эжектируются в вакуум с последующим излучением.

Авторы благодарят Э.И.Рашба за плодотворное обсуждение результатов.

Литература

1. Белов А.Г., Свищёв В.Н., Фуголь И.Я., Юртаева Е.М. Письма в ЖЭТФ, 1979, 30, 126.
2. Inoue K., Sakamoto H., Kanzaki H. Solid State Comm., 1984, 49, 1917.
3. Coletti F., Debever I.M., Zimmerer G. J. Chem. Phys., 1985, 83, 49.
4. Рашба Э.И., Шерман Е.Я. ФНТ, 1986, 12, 1096.

Физико-технический институт
низких температур
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию
16 сентября 1987 г.