

АВТОКОЛЕБАНИЯ ПЛОТНОСТИ ЭКСИТОНОВ И ТЕМПЕРАТУРЫ В ПРИМЕСНОМ МОЛЕКУЛЯРНОМ КРИСТАЛЛЕ

И.Ю.Голиней, А.А.Делюков, В.И.Сугаков

Предложена и реализована на эксперименте модель, в которой впервые наблюдались автоколебания в экситонно-примесной системе молекулярного кристалла.

Рассматривается молекулярный кристалл, содержащий ловушки для экситонов. При малых плотностях экситонов квантовый выход их люминесценции близок к единице, и главным механизмом передачи энергии от экситонов к решетке является бимолекулярная аннигиляция. При облучении светом в кристалле устанавливается стационарное распределение свободных экситонов и экситонов, локализованных на ловушках. Флуктуационное повышение температуры кристалла приводит к выбросу экситонов из ловушек в зону, растет скорость бимолекулярного тушения, что ведет к дальнейшему повышению температуры. Поэтому при определенных значениях внешних параметров (накачки, температуры термостата) стационарное состояние может оказаться неустойчивым и в системе возникнут автоколебания температуры и плотности экситонов. В полупроводниковых кристаллах автоколебания в электрон-экситонной системе наблюдались при другом механизме: при двойной накачке светом и волной СВЧ¹.

Поведение экситонной системы тонкого молекулярного кристалла, в котором внешний источник создает однородное по объему распределение экситонов, описывается следующими уравнениями:

$$dn/dt = K - n/\tau - \gamma n^2 - \frac{1}{2} \gamma_a n n^+ - \gamma_3 n n^- + \gamma_3 n^+ n e^{-\epsilon_i/T}, \quad (1)$$

$$dn^+ / dt = - n^+ / \tau_1 - 1/2 \gamma_a n n^+ + \gamma_3 n n^- - \gamma_3 n^+ N e^{-\epsilon_f / T}, \quad (2)$$

$$\alpha T^3 \frac{dT}{dt} = \epsilon_1 \gamma n^2 + \epsilon_2 \gamma_a n n^+ - \beta(T - T_1), \quad (3)$$

где K — скорость создания экситонов, n и n^+ — плотность свободных и захваченных экситонов, n^- — число ловушек, не занятых экситонами ($n^+ + n^- = n_1$ — полная концентрация ловушек), γ — константа аннигиляции двух свободных экситонов, γ_a — связанного и свободного, γ_3 — константа захвата экситона на ловушку, τ и τ_1 — времена жизни соответственно свободного и связанного экситонов, ϵ_1 и ϵ_2 — энергия, выделяемая при аннигиляции двух свободных и свободного и связанного экситонов (для мелких ловушек $\epsilon_1 \sim \epsilon_2$), ϵ_f — глубина ловушки, αT^3 — теплоемкость кристалла, β — коэффициент теплообмена между кристаллом и термостатом, T_1 — температура термостата, N — число молекул в единице объема кристалла.

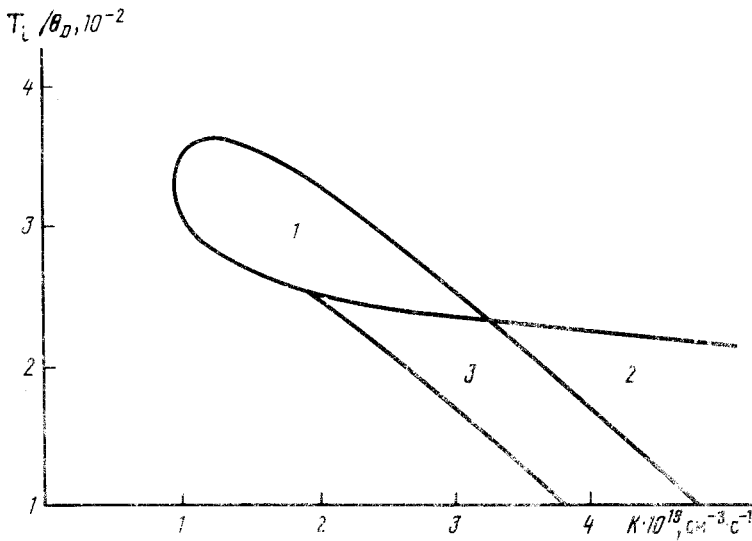


Рис. 1. Данные расчета области существования автоколебаний и бистабильности в зависимости от интенсивности накачки и температуры термостата. Для расчетов использованы параметры: $\tau = 2 \cdot 10^{-3} \text{ с}^{-1}$; $\tau_f/\tau = 5$; $\gamma = \gamma_a = \gamma_3 = 5 \cdot 10^{-13} \text{ см}^3/\text{с}$; $\epsilon_f = 34 \text{ см}^{-1}$; $\epsilon_1 = \epsilon_2 = 22550 \text{ см}^{-1}$; $\alpha = 114 \text{ эрг/К}^4 \text{ см}^3$; $N = 4 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$; концентрация ловушек 5%. $\beta = 2 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3} \text{ с}^{-1}$

Классификация особых точек системы (1) — (3) на плоскости внешних параметров K , T_1 для молекулярного кристалла с параметрами, характерными для триплетных экситонов приведена на рис. 1. В области 1 существует одна неустойчивая особая точка (фокус или узел), в этой области следует ожидать автоколебаний. В области 2 — три особые точки две из которых устойчивы. Здесь следует ожидать бистабильного поведения системы. В области 3 — одна из трех особых точек устойчива.

Результаты расчетов показывают, что область существования колебаний расширяется при увеличении параметров β и τ . Увеличение глубины ловушки ϵ_f приводит к повышению максимальной температуры, при которой существуют автоколебания, однако область их существования при этом уменьшается. Частота автоколебаний растет с ростом накачки.

Для экспериментов была выбрана система триплетных экситонов в кристаллах дейтеробензофенона- d_{10} с примесью бензофенона- h_{10} , которая образует триплетные ловушки

глубиной 34 см^{-1} . Кристалл помещался в гелиевый криостат с температурой рабочего объема от 2,4 до 4,2 К. Триpletные экситоны возбуждались ртутной лампой высокого давления ($\lambda = 365 \text{ нм}$) по схеме $S_0 \rightarrow S_1 \rightarrow T_1$. Измерялась интенсивность интегральной (по спектру) фосфоресценции кристалла. Доля свободных экситонов в ней не превышала 10^{-2} , остальная часть принадлежала экситонам, захваченным изотопическими ловушками.

В первой серии экспериментов образец погружался в жидкий гелий. Если образец с изотопической примесью имел толщину менее 0,1 мм, интенсивность фосфоресценции при стационарной накачке испытывала периодические колебания с частотой в несколько Гц (рис. 2). Колебания имели место при превышении накачкой порогового значения (около $0,5 \text{ Вт/см}^2$). С увеличением интенсивности накачки частота колебаний росла (вставка на рис. 2), а затем их периодичность нарушалась.

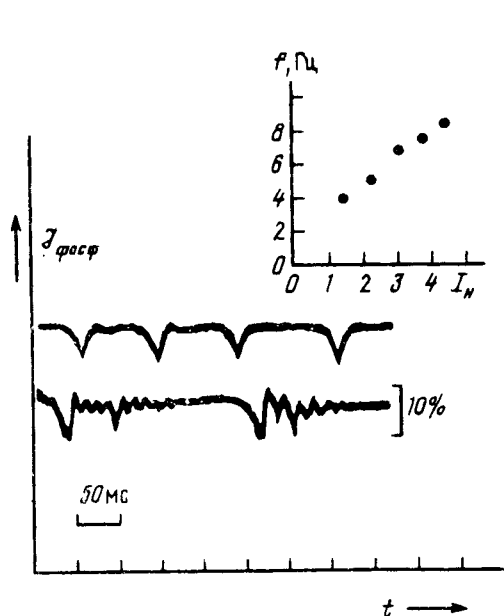


Рис. 2

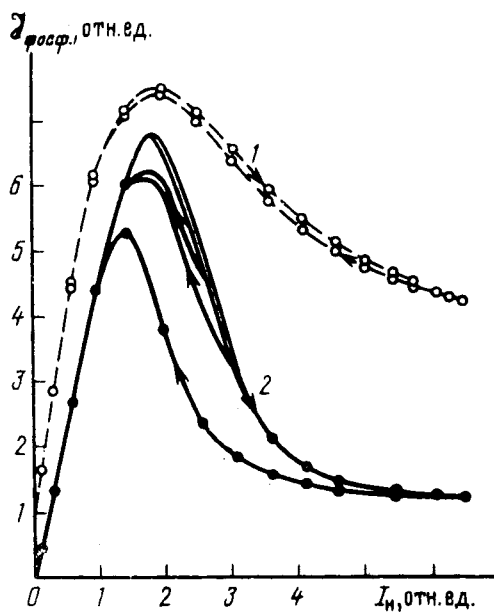


Рис. 3

Рис. 2. Колебания интенсивности фосфоресценции кристалла дейтеробензофенона- d_{10} при стационарной накачке. Оба образца содержали 5% примеси бензофенона- h_{10} и различались формой

Рис. 3. Зависимость интенсивности фосфоресценции кристалла дейтеробензофенона с 1% примеси бензофенона от интенсивности накачки при двух значениях температуры термостата: 1 — 4,20 К, 2 — 2,43 К

Свидетельством возможности объяснения наблюдаемых колебаний с помощью предложенной выше модели являются: 1) отсутствие автоколебаний в толстых образцах и в кристаллах, не содержащих мелких ловушек для триpletных экситонов; 2) проявление колебаний в виде провалов в интенсивности фосфоресценции; 3) пороговый характер возникновения колебательного процесса; 4) рост частоты колебаний с увеличением интенсивности накачки; 5) близость расчетных и наблюдаемых значений частот ($\nu_{\text{теор}} = 10 \div 20 \text{ Гц}$, $\nu_{\text{эксп}} = 4 \div 8 \text{ Гц}$). (Точное сопоставление частот в настоящее время провести затруднительно ввиду отсутствия надежных данных о ряде параметров кристалла, в частности, о параметре β). Перечисленные обстоятельства позволяют считать предложенное объяснение более предпочтительным, чем другие возможные, например, связанные с регулированием

отвода тепла из кристалла вследствие образования пленки газа между кристаллом и жидкостью. Наблюдения с 20-кратным увеличением показали, что колебания не коррелируют с образованием пузырьков при кипении гелия. Колебания сохранились и при перекрытии выхода газа из криостата, когда кипение прекратилось.

Во второй серии экспериментов кристалл располагался в газе над уровнем жидкого гелия. В этом случае теплоотдача из кристалла в термостат более медленная. Обнаружено, что в широкой области экспериментальных условий зависимость интенсивности фосфоресценции $J_{\text{фосф}}$ от накачки $I_{\text{н}}$ обладает гистерезисом (рис. 3) с шириной петли тем большей, чем ниже T_i . Гистерезис пропадает при переходе к образцу бензофенона с естественными ловушками, не чувствительными к температуре кристалла в окрестности 4,2К. Петля гистерезиса расположена на падающей части зависимости $J_{\text{фосф}}(I_{\text{н}})$ в области сильно выраженной нелинейности.

Появление гистерезиса может быть объяснено бистабильностью рассматриваемой системы. Имеются, однако, заметные отличия характера наблюдаемой зависимости $J_{\text{фосф}}(I_{\text{н}})$ от ожидаемого в модели: вместо петли бистабильного типа, характеризующейся при каждом $I_{\text{н}}$ не более чем двумя устойчивыми состояниями, наблюдается гистерезис ферромагнитного типа с шириной петли тем меньшей, чем меньше диапазон изменения накачки. Верхняя ветвь петли не вполне устойчива: здесь сигнал содержит дополнительную шумовую компоненту (на рис. 3 это отражено в виде уширения соответствующей части кривой 2). Особенности экспериментальной кривой, вероятно, связаны с неоднородностью оптической накачки.

Литература

1. Ашкинадзе Б.М., Субашиев А.В. Письма в ЖЭТФ, 1987, 46, 284.

Институт ядерных исследований
Академии наук Украинской ССР

Институт физики
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию
9 января 1989 г.