

ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ СКОРОСТИ АВТОЛОКАЛИЗАЦИИ ЭКСИТОНОВ В ЙОДИДАХ ЩЕЛОЧНЫХ МЕТАЛЛОВ ПРИ ПОНИЖЕНИИ СИММЕТРИИ РЕШЕТКИ

¹Н.Н. Жантурина, ²К.Ш. Шункеев, ¹Б.А. Алиев

¹Казахский национальный университет им. аль-Фараби, г.Алматы

²Актюбинский государственный педагогический институт, г.Актюбинск

В статье рассчитана скорость автолокализации экситонов при разных температурах и воздействии одноосного и всестороннего сжатия. На основе кинетических представлений определены время автолокализации экситонов и длина свободного пробега в некоторых щелочногалоидных кристаллах. Показано увеличение скорости автолокализации экситонов при одноосном сжатии и уменьшение – при действии всестороннего сжатия. Полученные результаты согласуются с экспериментальными данными.

Прогресс в развитии современных представлений о физике радиационно-стимулированных процессов в ионных кристаллах достигнут благодаря развитию скоростных методов регистрации. Установлено, что образование первичных радиационных дефектов происходит, в основном, при безызлучательном распаде электронных возбуждений в ненарушенной решетке. Особое внимание уделялось выяснению природы короткоживущего возбужденного состояния, которое предшествует созданию первичных структурных дефектов. Несмотря на то, что уже освоен субпикосекундный диапазон измерений, такие кинетические параметры как скорость релаксации автолокализованных экситонов, время люминесценции, время образования дефектов при различных температурах совсем еще мало изучены.

В ряде кристаллов квазичастицы (экситоны) могут существовать как в свободном так и в автолокализованном состояниях. Эти состояния разделены между собой автолокализационным барьером. Экситоны рождаются светом в свободном состоянии, но до высвечивания часть их успевает автолокализоваться, преодолевая автолокализационный барьер [3].

Кинетика автолокализации экситонов в щелочногалоидных кристаллах играет важную роль, так как образование дефектов проходит непосредственно через стадию автолокализации, и время, скорость релаксации электронных возбуждений непосредственно зависят от величины потенциального барьера автолокализации экситонов [4].

Высота потенциального барьера определяется по формуле

$$E = \frac{4A^3}{27B^2} \left(1 - 3 \frac{BC}{A^2} \right)^{3/2}, \quad (1)$$

где A, B, C - кинетическая энергия электрона, энергия релаксации решетки, вклад оптических фононов в энергию релаксации решетки соответственно.

В таблице 1 приведены рассчитанные значения потенциального барьера автолокализации экситонов в щелочногалоидных кристаллах и соответствующих значений параметров A, B, C .

Механизм преодоления экситонами автолокализационного барьера в ШГК совершенно различен в области высоких и низких температур. В первой области он является активационным, где справедлив закон Аррениуса, во второй – действует туннельный механизм, температурная зависимость скорости определяется зависимостью оптимального пути туннелирования в конфигурационном пространстве. Доля люминесценции, идущая из автолокализованных состояний определяется скоростью автолокализации. Чем выше

скорость автолокализации, тем ниже квантовый выход люминесценции, так как экситоны, не успев высветиться, автолокализуются с дальнейшим распадом на радиационные дефекты.

Таблица 1. Энергетические параметры автолокализации экситонов

| Кристалл | A(эВ) | B(эВ) | C(эВ) | E(эВ) |
|----------|-------|-------|-------|-------|
| KCl | 0.63 | 1,44 | 1,11 | - |
| NaBr | 0.8 | 0,81 | 0.55 | - |
| KBr | 0.77 | 0,79 | 0.44 | 0.001 |
| NaI | 0.82 | 0,63 | 0.24 | 0.033 |
| KI | 0,66 | 0,316 | 0,376 | 0.026 |
| RbI | 0.52 | 0,239 | 0,348 | 0.016 |
| CsI | 1.25 | 0.34 | 0.56 | 0.009 |

Автолокализационный барьер не задается извне, а определяется самой туннелирующей решеткой, в результате его динамика зависит от температуры.

Величиной, зависящей от температуры и определяющей распределение каналов аннигиляции экситона является скорость автолокализации экситонов [5].

По [1] скоростью автолокализации является величина $\omega = \frac{1}{\tau}$, где τ время жизни свободного экситона, определяющееся параметрами самой решетки и температурой. В то же время экситон в ЩГК релаксирует по двум каналам и скорость аннигиляции определяется как

$$\tau = [\tau_r^{-1} + \omega]^{-1}, \quad (2)$$

где τ_r^{-1} - скорость излучательной аннигиляции, не зависящая от температуры, и ω - скорость излучательной аннигиляции, определяемая по закону Аррениуса

$$\omega = \omega_0 e^{-\frac{E}{T}}, \quad (3)$$

где ω_0 определяется как скорость автолокализации при низких температурах, то есть величина обратно пропорциональная времени автолокализации экситонов при низких температурах.

Из теоретических выкладок расчета гамильтониана системы экситон-решетка, данной в работе [2] время жизни свободного экситона

$$\tau \leq \frac{\hbar}{A}, \quad (4)$$

где A - полуширина экситонной зоны.

Длина свободного пробега определяется как

$$l = \frac{\hbar k}{m} \tau, \quad (5)$$

где $k = 10^6$ волновое число для щелочногалогидных кристаллов, m - эффективная масса экситона в щелочногалогидном кристалле.

В кристалле RbI учеными Сонгом и Танимура удалось вычислить время возникновения E_x -люминесценции 200 ± 50 ps, из этого времени они вывели время автолокализации $2 \pm 0,5$ ns. В кристалле KI соответствующие времена рассчитаны как 100 ± 50 ps и 160 ± 180 ps.

Следуя экспериментальным и теоретическим данным, мы проанализировали, что время жизни свободных экситонов уменьшается в ряду RbI, KCl, KI, KBr, NaBr, NaI, CsI.

Поставив соответствующую поправку в выражение (3) в кристаллах KI и RbI, мы получили график зависимости скорости автолокализации экситонов до и при всесторонней деформации от температуры, до и при одноосной деформации от температуры и от степени сжатия (рис.1, рис.2, рис.3).

Экспериментально рассчитанное время жизни свободных экситонов в кристалле KI является довольно интересным фактом в связи с тем, что в этом кристалле величина потенциального барьера, разделяющего свободные и автолокализованные состояния экситона одна из наибольших. Это объясняется тем, что время жизни свободного экситона напрямую зависит от ширины экситонной зоны A. А в KI ширина экситонной зоны больше чем, в RbI, поэтому автолокализация экситонов происходит быстрее.

Из графика можно заметить, что в кристалле KI скорость автолокализации экситонов с увеличением температуры изменяется быстрее, что связано со значительной шириной экситонной зоны в этом кристалле. [7]

Используя формулы (5) и (6) и некоторые экспериментальные значения данных параметров нам удалось вычислить значения времени жизни свободных экситонов и длины свободного пробега экситонов до автолокализации в некоторых ШГК.

Вычисленные нами теоретические значения времени жизни свободных экситонов в щелочногалоидных кристаллах соответствуют экспериментальным данным о том, что в KI длина свободного пробега экситонов составляет несколько десятков постоянных решетки, а в KBr один из наименьших значений потенциального барьера автолокализации.

Таблица 2. Механические параметры релаксации экситонов в щелочногалоидных кристаллах

| Кристалл | Время жизни свободного экситона (нс) | Длина свободного пробега (A) | Общая скорость релаксации экситонов (10^7 с ⁻¹) |
|----------|--------------------------------------|------------------------------|--|
| KI | 1,6 | 17000 | 380 |
| RbI | 2 | 191000 | 45 |
| KBr | 0,0018 | 2 | - |

Одноосное сжатие приводит к уменьшению потенциального барьера автолокализации экситонов в кристалле. Коэффициенты A, B, C для определения потенциального барьера автолокализации экситонов зависят от степени сжатия:

$$A_u = \frac{2 + 1/\varepsilon^2}{3} A, \quad B_u = \frac{B}{\varepsilon^{7/3}}, \quad C_u = \frac{2 + \varepsilon}{\varepsilon} C.$$

Интересные эффекты происходят при гидростатическом сжатии кристаллов. При этом постоянная решетки уменьшается плавно и при этом с увеличением степени сжатия потенциальный барьер в щелочногалоидном кристалле должен возрастать. [8]

В случае гидростатического сжатия коэффициенты принимают вид

$$A_u = \frac{A}{\varepsilon^2}, \quad B_u = \frac{B}{\varepsilon^7}, \quad C_u = \frac{C}{\varepsilon}. \quad (6)$$

Используя выкладки, приведенные выше и экспериментальные данные по времени автолокализации экситонов нам удалось проанализировать динамику автолокализационного барьера при разных температурах и действии гидростатического сжатия и одноосной деформации.

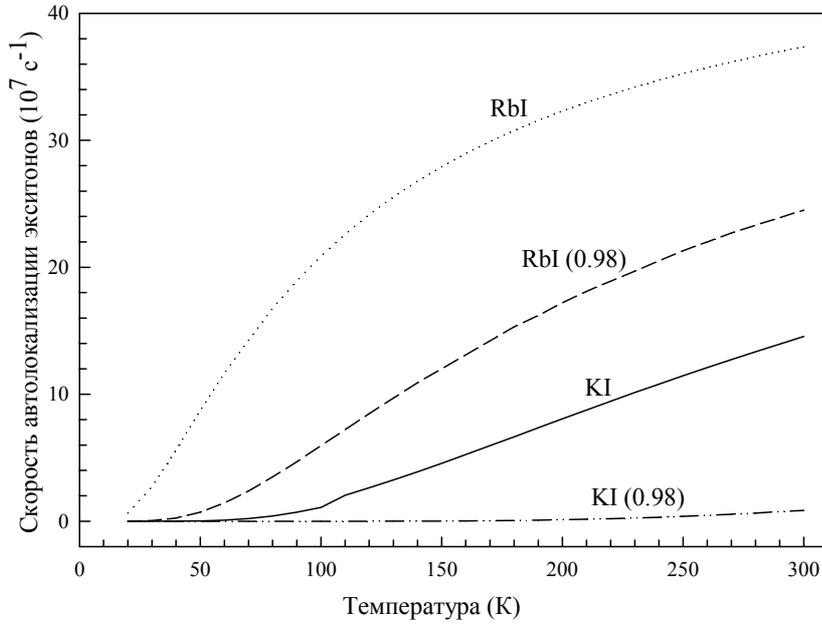


Рис.1 Влияние температуры на скорость автолокализации экситонов в кристаллах KI и RbI до и после всестороннего сжатия

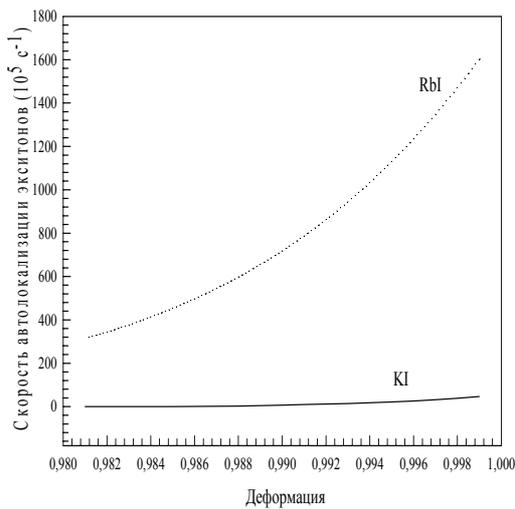


Рис.2 Зависимость скорости автолокализации экситонов кристаллах KI и RbI от степени всестороннего сжатия

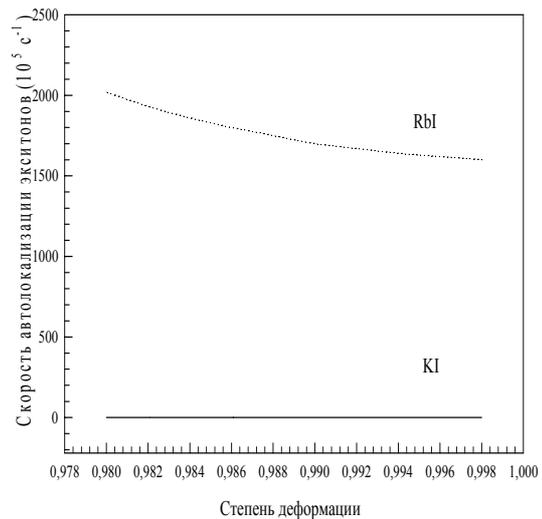


Рис.3 Зависимость скорости автолокализации экситонов в кристаллах KI и RbI от степени одноосной деформации

Как видно из графиков, с увеличением температуры скорость автолокализации возрастает при одноосном сжатии.

При гидростатическом сжатии с увеличением степени сжатия скорость автолокализации экситонов уменьшается, причем в RbI деформация значительно влияет на динамику автолокализационного барьера; при одноосном – увеличивается.. Также можно заметить значительное повышение скорости автолокализации экситонов в KI при одновременном действии температуры и деформации, тогда как при постоянной температуре с изменением степени гидростатического сжатия скорость автолокализации практически не меняется.

Кинетика автолокализации экситонов в щелочногалоидных кристаллах позволяет определять такие характеристики, как время образования дефектов в ЩГК, распределение каналов релаксации экситонов, время затухания люминесценции в зависимости от температуры. Нам удалось вычислить с помощью теоретических выкладок время жизни свободных экситонов и длину свободного пробега в кристаллах KI, RbI, KBr; исследовать зависимость скорости автолокализации экситонов от температуры и степени всестороннего и одноосного сжатия. Увеличение скорости автолокализации экситонов при действии одноосного сжатия подтверждается экспериментальным фактом усиления интенсивности люминесценции автолокализованных экситонов в щелочногалоидных кристаллах при одноосной деформации. В силу этого проанализированная нами зависимость скорости автолокализации экситонов в щелочногалоидных кристаллах от степени всестороннего сжатия позволяет сделать вывод об ослаблении люминесценции при всестороннем сжатии щелочногалоидного кристалла.

Полученные нами данные хорошо согласуются с экспериментальными результатами и позволяют глубже исследовать кинетику затухания люминесценции в ЩГК.

Литература

1. А.С. Иоселевич, Э.И. Рашба. Температурная зависимость скорости автолокализации. // Письма в ЖЭТФ. – Т. 40, вып.8. – С. 348-351.
2. Агранович В.Г. Теория экситонов. - М., 1978.
3. Сагимбаева Ш.З. Температурное тушение люминесценции автолокализованных экситонов при низкотемпературной одноосной деформации. // Дис. на соиск. учен. степ. канд. физ.-мат. наук. – Актобе, 2003. – 67 с.
4. Ш.А. Вахидов, С.Джуманов. Новая модель экситон-дефектного превращения в ионных кристаллах. // Известия АН СССР. - №5. – С.63.
5. Тулепбергенов С.К. Моделирование влияния деформации на автолокализацию и распад электронных возбуждений в щелочногалоидных кристаллах // Дис. на соиск. учен. степ. канд. физ.-мат. наук. – Актобе, 2002. – 120 с.
6. Song K.S., Williams R.T. Self-Trapped Excitons // Springer series in Solid-State Sciences Vol. 105. Springer-Verlag, Berlin, 1993.
7. Алукер Э.Д., Лусис Д.Ю., Чернов С.А. Электронные возбуждения и радиолуминесценция щелочногалоидных кристаллов. – Рига: Зинатне, 1979. – 252 с.
8. Лущик Ч.Б., Лущик А.Ч. Распад электронных возбуждений с образованием дефектов в твердых телах. – М.: Наука, 1989. – 264 с.
9. Васильев А.Н., Михайлин В.В. Введение в спектроскопию диэлектриков. – М., 1998. – 213 с.

СІЛТІЛІ МЕТАЛДАРДЫҢ ЙОДИДТЕРІНДЕ ТОР СИММЕТРИЯСЫ ТӨМЕНДЕГЕНДЕГІ ЭКСИТОНДАРДЫҢ ТҰРАҚТАЛУ ЖЫЛДАМДЫҒЫНЫҢ ТЕМПЕРАТУРАЛЫҚ ТӘУЕЛДІЛІГІ

Н.Н. Жантұрина, К.Ш. Шүнкеев, Б.А. Әлиев

Мақала сілтілі галоидты кристалдарда тор симметриясы біресті деформациямен және жан-жақты қысу әсер еткенде әр түрлі температураларда экситондардың тұрақталу жылдамдығы анықталды. Кейбір сілтілі галоидты кристалдарда кинетикалық теория негізінде экситондардың тұрақталу жылдамдығы, еркін жүру жолы анықталды. Алынған нәтижелер эксперименттік нәтижелермен сәйкес келеді.

THE TEMPERATURE DEPENDENCE OF EXCITONS SELF-TRAPPING RATE IN IODIDES OF ALKALI METALS AT LATTICE SYMMETRY LOWERING

N.N. Zhanturina, K.Sh. Shunkeev, B.A. Aliev

In the article was calculated the value of excitons self-trapping rate at lattice symmetry lowering and at different temperatures. By the theory of excitons kinetic were determined the time of excitons self-trapping, the length of free path of excitons in several alkali halides. The results are in agreement with experimental facts.