

УДК 538.9

Н.Н. Жантурина, К.Ш. Шункеев¹, Б.А. Алиев*

Казахский национальный университет имени аль-Фараби. Казахстан, г. Алматы

¹Актюбинский государственный педагогический институт. Казахстан, г. Актобе

*E-mail: Bahodir.Aliev@kaznu.kz

Воздействие термического флуктуирующего потенциала на динамику автолокализации экситонов в кристалле KI

Аннотация. В рамках континуальной теории в первом приближении предложена модель автолокализации экситона с учетом воздействия флуктуирующего потенциала. На основе квантово-механической теории об изменении волнового вектора экситонов при термическом воздействии найдены выражения температурной зависимости постоянной решетки в щелочногалоидных кристаллах (ЩГК). На примере кристалла KI получена зависимость высоты потенциального барьера автолокализации экситонов от температуры. Уменьшение высоты потенциального барьера при увеличении температуры интерпретируется усилением интенсивности свечения автолокализованных экситонов в ЩГК при нагреве.

Ключевые слова: экситон, квантово-механическая теория, кристалл KI, потенциальный барьер автолокализации.

Одним из методов, хорошо описывающих автолокализацию экситонов в твердых телах является одноэлектронное приближение. В этом приближении потенциальное поле, в котором движется электрон создается взаимодействием между электроном и ядрами атомов в фиксированном положении. В работе [1] с учетом многофононных процессов уже построена теория зависимости высоты потенциального барьера автолокализации экситонов в ЩГК от степени одноосного и всестороннего сжатия решетки деформацией. Сотрудниками лаборатории физики ионных кристаллов обнаружен эффект усиления интенсивности люминесценции автолокализованных экситонов в ЩГК при одноосном сжатии и при термическом нагреве [2], и эти результаты интерпретированы уменьшением высоты потенциального барьера автолокализации экситонов

с ростом температуры. Однако не существовало теоретической модели, с помощью которой могла быть исследована температурная зависимость автолокализационного барьера (АЛБ). Детальное объяснение природы этого явления и расчет высоты потенциального барьера в зависимости от температуры можно дать с помощью введения понятия флуктуирующего потенциала, индуцированного фононами.

Спектр одноэлектронных состояний кристалла определяется решением уравнения Шредингера для «лишней» частицы (т.е. электрона и дырки), движущейся в усредненном поле, создаваемом всеми другими электронами и ядрами. Учитывая то, что экситон движется в поле фононов кристаллической решетки, кинетическую энергию свободной частицы можно записать в виде [3]:

$$A = \frac{\hbar^2}{2m} k^2 - V, \quad (1)$$

где A – кинетическая энергия экситона, \hbar – приведенная постоянная Планка, $k = \frac{3\pi}{a}$ – волновой вектор экситона, a – постоянная решетки, m – эффективная масса экситона, V – периодический потенциал, обусловленный экситон-фононным взаимодействием,

Влияние периодического потенциала может быть учтено с помощью эффективной массы

$$D = \sqrt{2Bk_B T}, \quad (2)$$

где $B = \frac{E_d^2}{2\beta a_0^3}$ – энергия релаксации решетки (выигрыш энергии при релаксации решетки вокруг экситона), k_B – постоянная Больцмана, T – температура.

Выражение для флуктуирующего потенциала получено Тойозавой при расчете формы линии экситонных переходов [4]. При квантовомеханических вычислениях ему удалось определить возмущение, влияющее на ширину линии прямых экситонных переходов в твердом теле, зависящее от температуры. Им оказался флуктуирующий потенциал. Эта величина обусловлена многофононными процессами, и с помощью ее введения объяснена температурная зависимость коэффициента поглощения в законе Урбаха, тем самым и параметра экситон-

экситона, то есть при введении данной величины в уравнение Шредингера отпадает необходимость в выражении температурной зависимости эффективной массы. В работе [3] периодический потенциал назван потенциалом возмущения. Таким возмущением для автолокализуемого экситона являются колебания кристаллической решетки, которые вызывают флуктуирующий потенциал для поля движущегося экситона, равный:

фононного взаимодействия. Еще ранее Тойозавой было предсказано о связи правила Урбаха с процессом автолокализации экситонов. Он сформулировал простую модель, основанную на взаимодействии мгновенно локализованных экситонов с фононами. Если поглощается свет с энергией меньшей, чем ширина запрещенной зоны, то дефицит энергии в поглощении преодолевается через взаимодействие с фононами. То есть в области «хвоста» усиливаются экситон-фононные взаимодействия и константа начинает зависеть от температуры. Через спектр поглощения Урбаха можно удачно проанализировать экспоненциальное распределение энергий автолокализованных экситонов. Используя правило Урбаха и критерии автолокализации экситонов, Тойозава записал, что следующим образом:

$$D/B = (2gk_B T/B)^{1/2}, \quad (2)$$

откуда следует, что автолокализация экситонов в ЩГК происходит путем термической активации, так как флуктуирующий потенциал является функцией температуры.

Используя (1) и (2) выражение для высоты потенциального барьера автолокализации экситонов в ЩГК запишем следующим образом [1]:

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

где $C = \frac{e^2}{\varepsilon'a}$ – вклад оптических фононов в энер-

гию релаксации решетки.

При термическом нагреве изменяется каждая из величин, входящих в выражение (3), вследствие увеличения постоянной решетки. Температурную зависимость постоянной решетки находим из следующих соображений квантовой механики.

Считая газ экситонов невырожденным электронным газом (экситон – бозон) [6], применяя к закону сохранения энергии больцмановскую

При достаточно низких температурах, когда энергия теплового движения $k_B T$ намного меньше ширины экситонной зоны A большинство экситонов находится в пространстве волновых векторов k_0 , при увеличении температуры меняется волновой вектор экситона, и его отклонение от начального значения χ можно найти по следующей формуле [5]:

$$k = k_0 - \chi. \quad (4)$$

статистику, отклонение волнового вектора от начального значения запишем в виде следующего выражения:

$$\chi = \frac{j}{\hbar} \sqrt{3mk_B T}, \quad (5)$$

где m – эффективная масса экситона, \hbar – приведенная Планка, j – параметр, зависящий от термического влияния на межатомные или межмолекулярные расстояния. Для щелочногалогенидных

кристаллов он варьирует в пределах от 0,01 до 0,1 [7].

Используя выражения (4) и (5), температурную зависимость постоянной решетки находим по формуле:

$$a = \frac{a_0 \hbar \sqrt{\pi}}{\hbar \sqrt{\pi} - a_0 j \sqrt{mk_B T}}. \quad (6)$$

Расчеты согласно выражению (6) доказывают увеличение межатомного расстояния с ростом температуры и не противоречат экспериментальным данным [8] о том, что в интервале температур от 0 до 300 К происходит термическое расширение ЦГК: $\delta = 0,7\%$ для хлоридов,

$\delta = 0,8\%$ для бромидов, $\delta = 0,9\%$ для йодидов, $\delta = 1-1,1\%$ для галогенидов цезия. Погрешности при вычислениях составляют 7,3%.

Используя выражения (3), (6) и зависимость A, B, C от постоянной решетки получаем:

$$E(T) = \frac{4\left(A\left(\frac{a_0}{a}\right)^2 - D\right)^3 \left(1 - 3\frac{BC}{A^2}\right)^{3/2}}{27B^2\left(\frac{a_0}{a}\right)^6}. \quad (7)$$

По графику, построенному согласно формуле (7) (рис. 1) на примере кристалла KI мож-

но заметить уменьшение АЛБ с ростом температуры.

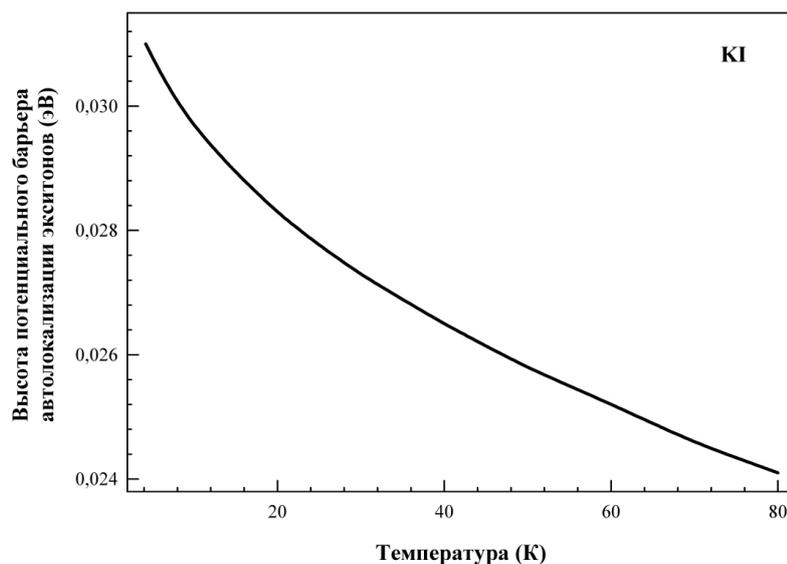


Рисунок 1 – Зависимость потенциального барьера автолокализации экситонов в кристалле KI от температуры

Из полученной зависимости можно проанализировать, что в интервале температур 4,2-80 К в кристалле KI высота потенциального барьера автолокализации экситонов уменьшается на 0,008 эВ. Подобный результат является следствием действия флуктуирующего потенциала, индуцированного фононами. При увеличении температуры растет плотность фононных состояний и увеличивается вероятность автолокализации экситонов в ЩГК за счет уменьшения высоты потенциального барьера. При одноосном сжатии ЩГК до 2% при 80 К в континуальной теории высота потенциального барьера уменьшалась на сотую долю эВ, при этом по данным [9] интенсивность свечения возрастает примерно в 8 раз, поэтому можно сделать вывод, что действие деформации более чем на порядок значительнее, чем влияние температуры на высоту автолокализационного барьера.

Понижение высоты потенциального барьера автолокализации экситонов в первом приближении связано с преобладающим уменьшением ширины экситонной зоны (кинетическая энергия экситона) и, следовательно с увеличением параметров экситон-фононного взаимодействия. В работе [6] приведены результаты исследований температурной зависимости свечений синглетного молекулярного автолокализованного экситона при 4,42 эВ и 3,35 эВ для KBr и CsBr, соответственно. В случае создания фотонами 7 эВ нагрев от 15 до 30 К облегчает

преодоление потенциального барьера для кристалла KBr. Такая же ситуация наблюдалась и для CsBr, т.е. при нагреве от 4,2 К до 50 К происходит усиление интенсивности свечения АЛЭ. Эти эффекты служат прямым доказательством уменьшения высоты потенциального барьера автолокализации экситонов в низкотемпературной области [10].

Литература

- 1 Тулепбергенов С.К. Автолокализация экситонов в континуальной модели щелочногалоидных кристаллов // Вестник КазНУ, сер. физ. – 2001. – №2(11). – С. 93-100.
- 2 Шункеев К.Ш., Эланго А.А., Сармуханов Е.Т., Бекешев А.З., Тулепбергенов С.К., Сагимбаева Ш.З. Эффект разгорания люминесценции автолокализированных экситонов одноосно сжатых щелочногалоидных кристаллов // Проблемы спектроскопии и спектрометрии / Межвуз. сб. науч. трудов. Екатеринбург: УГТУ, 2000. – Вып.5. – С.119-128.
- 3 Родригес.К., Федянин В.К. Метод континуального интегрирования в проблеме полярона // Физика элементарных частиц и атомного ядра. – 1984. – Том 15. – Вып.4. – С. 870-898.
- 4 Toyozawa Y. Dynamics and instabilities of an exciton in the phonon field and the correlated absorption-emission spectra // Pure & Appl. Chem. – 1997. – №6. – P. 1171-1178.

- 5 Агранович В.М. Теория экситонов. – М.: Наука, 1968. – 382 с.
- 6 Васильев А.Н., Михайлин В.В. Введение в спектроскопию диэлектриков. – М: МГУ им.Ломоносова, 1998. – 213 с.
- 7 Song K.S., Williams R.T. Self-Trapped Excitons // Springer series in Solid-State Sciences. – Berlin: Springer-Verlag, 1993. – Vol.105. – 410 p.
- 8 Алукер Э.Д., Лусис Д.Ю., Чернов С.А. Электронные возбуждения и радиолуминесценция щелочногалоидных кристаллов. – Рига: Зинатне, 1979. – 252 с.
- 9 Шункеев К.Ш. Релаксация электронных возбуждений в щелочногалоидных кристаллах при понижении симметрии решетки. – Актобе, 2008. – 193 с.
- 10 Ikezawa M., Wakita S., Kojima T. Intrinsic luminescence of alkali iodides // J. Soc. Phys. Japan. – 1967. – Vol. 23, No.1 – P138-139.

Н.Н. Жантурина, К.Ш. Шункеев, Б.А. Әлиев

KI кристалындағы экситондар тұрақталу динамикасына флуктуацияға ұшырайтын потенциалдың әсер етуі

Мақалада бірінші жақындауда флуктуацияға ұшырайтын потенциалдың KI кристал негізінде экситондардың тұрақталу динамикасына әсер етуі көрсетілген. Кванттық-механикалық теория негізінде сілтілі галоидты кристалдардағы тор тұрақтысының температураға тәуелді өрнектері келтірілген. Сол кристалл үшін экситондардың тұрақталуының потенциалдық бөгет биіктігінің температураға тәуелді графигі тұрғызылды. Келтірілген нәтижелер тұрақталған экситондардың люминесценциясының интенсивтілігінің артуымен дәлелденеді.

Түйін сөздер: экситон, кванттық механикалық теория, KI кристалы, автоокшаулаудың потенциалдық тосқауыл.

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

The influence of fluctuation potential on self-trapping excitons dynamics in the crystal KI

There is an excitons self-trapping continuum model with the fluctuation potential in this article. The temperature dependence alkali halides lattice constant expression have written with the apply of quantum mechanical theory. On the example of KI crystal we made the graph of temperature dependence of the excitons self-trapping potential barrier height. Such results we interpreter by self-trapping luminescence intensity growth in alkali halides with the temperature increasing.

Keywords: exciton, quantum-mechanical theory, crystal KI, the potential barrier of self-trapping.