

УДК 535.37

МОДЕЛИРОВАНИЕ СПЕКТРОВ ВОЗБУЖДЕНИЯ КРОСС-ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ В КРИСТАЛЛАХ CsBr И BaF₂

Н. Ю. Кирикова, В. Н. Махов

Для кристаллов CsBr и BaF₂ проведены модельные расчеты спектров возбуждения кросс-люминесценции в диапазоне энергий до 30 эВ для температур 90 и 300 К для BaF₂ и 90 К – для CsBr. При учете подвижности остовных дырок достигается удовлетворительное согласие между расчетными и экспериментальными спектрами.

Существенное влияние на спектральные и временные характеристики кросс-люминесценции (КРЛ), т.е. люминесценции, обусловленной излучательной рекомбинацией электронов валентной (анионной) зоны с дырками верхней остовной (катионной) зоны, могут оказывать безызлучательные приповерхностные потери [1–3]. В частности, антикорреляция спектра возбуждения КРЛ и спектра поглощения может быть связана с безызлучательным распадом остовных дырок в приповерхностном слое кристалла. В [4] нами было проведено моделирование спектров возбуждения КРЛ с учетом приповерхностных потерь остовных дырок для кристаллов *RbF*, *CsF* и *CsCl*, для которых не наблюдается температурного тушения КРЛ, т.е. в этих кристаллах процесс Оже-распада дырок верхней остовной зоны не играет существенной роли для процесса КРЛ. В настоящей работе представлены модельные расчеты спектров возбуждения КРЛ для кристаллов *BaF₂* и *CsBr*, выполненные для *BaF₂* для двух значений температур (90 и 300 К), а для *CsBr*, имеющего сильное температурное тушение КРЛ при 300 К – только для 90 К. Расчеты для *CsBr* выполнены с учетом того, что Оже-распад энергетически запрещен только для состояний, близких к потолку остовной зоны (в достаточно узком интервале энергий $\Delta E_R \leq 1$ эВ), а с понижением энергии появляется возможность Оже-распада остовной дырки. Методика расчета аналогична использованной в

[4], где описание подвижности остовных дырок проводилось в рамках диффузионной модели с параметром длины диффузии L_c . Процессы создания вторичных остовных дырок и поправки на отражение также были включены в рассмотрение. Результаты моделирования сравнивались с экспериментальными данными [5], полученными ранее с использованием синхротронного излучения.

Спектр возбуждения (спектр квантового выхода) КРЛ $\eta(E)$ рассчитывался по формуле:

$$\eta(E) = \frac{(1 - R(E))}{(1 + \mu(E)L_c)} \left[\frac{\mu_c(E)}{\mu(E)} (1 + f_s^c(E)) + \frac{\mu_v(E)}{\mu(E)} f_s^v(E) \right],$$

где $R(E)$ – коэффициент отражения; $\mu(E)$ – полный коэффициент поглощения; $\mu_c(E)$ и $\mu_v(E)$ – “парциальные” коэффициенты поглощения, обусловленные переходами из остовой и валентной зон соответственно; $f_s^c(E)$ и $f_s^v(E)$ – вероятности создания вторичной остовой дырки горячим фотоэлектроном, образующимся при поглощении фотона (с энергией E) остовой и валентной зоной соответственно. Рассматривались только первые пороги этих процессов при энергиях $E_t^c = 2E_g^c$ и $E_t^v = E_g + E_g^c$ (E_g^c – порог возбуждения КРЛ, т.е. энергетическая разница между потолком остовой зоны и дном зоны проводимости; E_g – ширина запрещенной зоны), в области которых имеются экспериментальные данные по спектрам возбуждения. В рассматриваемом спектральном диапазоне создание вторичных остовных дырок при поглощении внутренними оболочками невозможно. При вычислении функций $f_s^c(E)$ и $f_s^v(E)$ использовалось приближение постоянной плотности состояний в валентной и остовой зонах, а также предполагалась равновероятность рассеяния горячих фотоэлектронов на всех состояниях валентной и остовой зон. При таком приближении значения функций не превышают 0,5. Величины параметров E_g , ΔE_v (ширина валентной зоны) и ΔE_c (ширина остовой зоны), используемые при расчетах значений этих функций, взяты из [6, 7].

Данные по спектрам отражения были взяты из [8]. Спектры поглощения рассчитывались по спектрам отражения с помощью соотношений Крамерса – Кронига. Полный спектр поглощения (коэффициент поглощения) разбивался на несколько “парциальных” спектров (см. пример разбиения для кристалла $CsBr$ на рис. 1а): $\mu = \mu_v + \mu_{ex} + \mu_c + \mu_{in}$, где $\mu_v(E)$ и $\mu_c(E)$ были введены выше; $\mu_{ex}(E)$ – “парциальный” спектр поглощения, соответствующий созданию катионных экситонов (отличный от нуля между энергиями E_0 и E_1 , соответствующими характерным минимумам в спектре поглощения); $\mu_{in}(E)$ – “парциальный” спектр поглощения переходов из внутренних оболочек (вводится в

диапазонах поглощения соответствующих внутренних уровней); $\mu_v(E)$ экстраполирован в высокоэнергетическую область с использованием асимптотической зависимости $\mu_v(E) = \mu_v(E_0)(E_0/E)^2$, а $\mu_c(E)$ аппроксимирован вблизи края поглощения выражением $\mu_c(E) = \alpha(E - E_g^c)^{1/2}E$. Модельные и экспериментальные спектры возбуждения КРЛ для кристаллов $CsBr$ и BaF_2 представлены на рис. 1б и 2 соответственно.

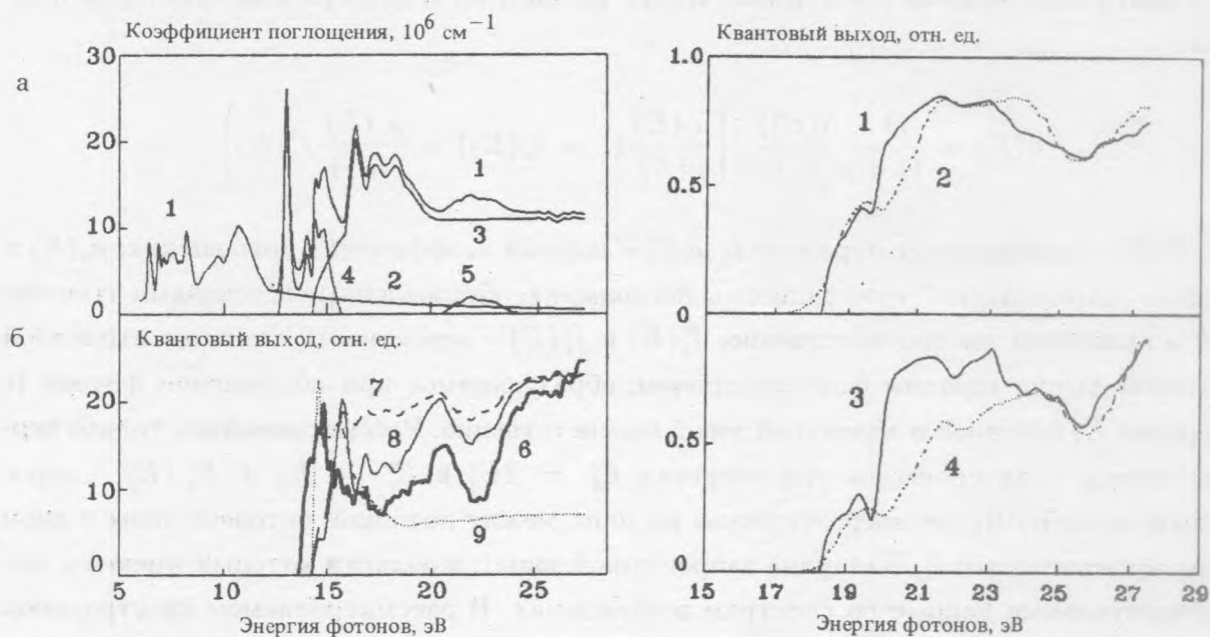


Рис. 1. а) Разбиение спектра поглощения (1) кристалла $CsBr$ (при 90 K) на парциальные спектры поглощения, обусловленные переходами из валентной зоны (2), созданием катионных экситонов (3), переходами из основной зоны (4), переходами с внутренних оболочек (5). б) Экспериментальный (6) и расчетные спектры возбуждения кросс-люминесценции для кристалла $CsBr$ (при 90 K) при значении параметра длины диффузии катионных дырок $L_c = 0 \text{ \AA}$ (7) и 1000 \AA (8) без учета Оже-распада, и при $L_c = 0 \text{ \AA}$ - с его учетом ($\Delta E_R = 0,3 \text{ эВ}$) (9).

Рис. 2. Расчетные (1, 3) и экспериментальные (2, 4) спектры возбуждения кросс-люминесценции для кристалла BaF_2 при "оптимальных" значениях параметра $L_c = 0 \text{ \AA}$ (1) (при $T = 300 \text{ K}$) и $L_c = 30 \text{ \AA}$ (3) (при 90 K).

Хотя трудно определить количественно "наиболее оптимальную" величину L_c , тем не менее, качественный анализ позволяет сделать вывод, что наилучшее соотношение экспериментальных и расчетных спектров достигается при значениях L_c , близких к 0 и 30 \AA для BaF_2 при 300 и 90 K соответственно, и 1000 \AA для $CsBr$ при 90 K. Как

это уже было отмечено ранее для ряда кристаллов [4], "оптимальное" значение L_c для BaF_2 также понижается при повышении температуры.

При моделировании спектров возбуждения КРЛ в кристаллах $CsBr$ возможность Оже-распада остовных дырок учитывалась аналогично [10] (где остовные дырки считались локализованными). Рассчитанный таким образом спектр в значительной степени отличается от экспериментального, за исключением, возможно, узкой области вблизи края возбуждения КРЛ. Если же при выполнении расчетов не учитывать Оже-распад остовных дырок, имитация спектра значительно улучшается, что позволяет говорить о том, что время релаксации остовных дырок (или решетки) может быть меньше, чем время межатомного Оже-распада, хотя это и противоречит выводам, сделанным в [10]. Тот факт, что квантовый выход КРЛ в $CsBr$ (при 90 K), где Оже-распад энергетически запрещен только для состояний, близких к потолку остовой зоны ($\Delta E_R \leq 1 \text{ эВ}$), имеет тот же порядок, что и в BaF_2 , где Оже-процессы не играют существенной роли, также говорит в пользу этого предположения.

Приповерхностные потери остовных дырок могут также влиять на время затухания КРЛ из-за возникновения дополнительного канала безызлучательного распада остовных дырок вблизи поверхности. В принципе, это позволяет объяснить спектральную зависимость времени затухания КРЛ, наблюдаемую для некоторых кристаллов при возбуждении в ВУФ-области [2, 3]. Однако, для BaF_2 при 300 K время затухания КРЛ практически постоянно в спектральном диапазоне возбуждающих фотонов 18 - 30 эВ [3]. Как было отмечено выше, для BaF_2 при 300 K наилучшее соответствие модельных и экспериментальных спектров достигается при $L_c = 0$ (а при 90 K - при $L_c \approx 30 \text{ \AA}$), т.е. в рамках модели подвижности остовных дырок это означает, что дырки локализуются практически сразу же после рождения и не достигают поверхности. Это подтверждает упомянутую выше слабую зависимость времени затухания КРЛ в BaF_2 от энергии.

Другая особенность моделирования для BaF_2 состоит в том, что "провал" в спектре возбуждения около 25 эВ воспроизводится только при предположении, что широкий пик поглощения в этой области не связан с созданием дырок в верхней остовой зоне. Этот пик может быть отнесен к поглощению (2p)-орбиталями F^- , частично ответственными за поглощение в области переходов из (5p)-зоны Ba^{2+} [9].

Таким образом, при изучении свойств КРЛ необходимо учитывать возможность безызлучательной приповерхностной гибели остовных дырок. Однако, чтобы определить конкретную природу процессов, приводящих к их гибели (резонансный перенос энергии, миграция термализованных или нетермализованных свободных дырок или прыжковая

диффузия локализованных дырок), требуются дополнительные исследования.

Авторы благодарят А. Н. Васильева за полезное обсуждение полученных результатов.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Александров Ю. М., Махов В. Н., Хайдуков Н. М., Якименко М. Н. ФТТ, **31**, 235 (1989).
- [2] Kubota S., MacDonald M., Munro I. H., J. Lumines., **48 & 49**, 589 (1991).
- [3] Kamenskikh I. A., MacDonald M., Munro I. H., Makhov V. N., Mikhailin V. V., and Terekhin M. A., Preprint Daresbury Laboratory DL/SCI/P882E (1993).
- [4] Кирикова Н. Ю., Махов В. Н. ФТТ, **34**, 2907 (1992).
- [5] Makhov V. N., Nucl. Instrum. & Methods, **A308**, 187 (1991).
- [6] Poole R. T., Jenkin J. G., Liesegang J., and Leckey R. C. G., Phys. Rev. B, **11**, 5179 (1975).
- [7] Poole R. T., Szajman J., Leckey R. C. G., Jenkin J. G., and Liesegang J., Phys. Rev. B, **12**, 5872 (1975).
- [8] Rubloff G. M., Phys. Rev. B, **5**, 662 (1975).
- [9] Ермаков Л. К., Родный П. А., Старостин Н. В. ФТТ, **33**, 2542 (1991).
- [10] Kikas A. and Elango M., Nucl. Instrum. & Methods, **A308**, 211 (1991).

Поступила в редакцию 16 мая 1994 г.