

Релаксация и горячая люминесценция в твердом Хе

© В. Хижняков, М. Сельг, Д. Неведров

Институт теоретической физики, Тартуский Университет,
 EE2400 Тарту, Эстония
 Институт физики,
 EE2400 Тарту, Эстония

Представлено теоретическое описание многофононных распадов сильно возбужденных локализованных колебаний. Предсказаны замедление скорости распада при больших колебательных амплитудах и прыжковое ускорение релаксации при некоторых критических амплитудах. Сильно возбужденные колебательные состояния могут возникать на локализованных экситонах в кристаллах благородных газов, что может также проявляться в горячей люминесценции. Проведены сравнительные оценки наблюдаемого и рассчитанного спектров Хе₂^{*} в кристалле Хе.

Большой интерес в современной физике твердого тела представляют процессы с участием сильно возбужденных колебательных состояний и механизмы перераспределения энергии локализованных возбуждений по кристаллической решетке. Достаточно подробно изучено явление концентрации энергии в кристаллах с примесями, а также в идеальных нелинейных решетках. В классическом описании такие возбуждения будут стабильными, поскольку все гармоники этих мод лежат вне резонанса с фононным спектром. Задачу можно решать с применением методов квантовой механики, но поскольку амплитуды колебаний велики, квантовая теория возмущений не может быть использована в силу отсутствия малого параметра в потенциале межатомного взаимодействия.

Распад локализованных возбуждений, связанных с дефектами, а также самолокализованных солитонов в идеальных нелинейных решетках [2] можно описать с помощью ранее разработанной теории [1]. Обнаружено, что распад является сильно неэкспоненциальным. При определенных критических амплитудах колебаний наблюдаются выбросы большого количества колебательной энергии в фононный континуум. Проведенные расчеты показывают, что этот механизм работает в кристаллах с простой кубической решеткой [6] и в нелинейных одноатомных цепочках [3]. Критическими будут являться амплитуды порядка 0.3–0.4 Å, что реально может наблюдаться на локализованных экситонах в кристаллах благородных газов.

При описании взаимодействия возбужденной моды с фононным континуумом следует учесть, что операторы рождения и уничтожения фононов (\hat{a}^+ и \hat{a}) меняются в поле локального колебания. Новые фононные операторы равны $\hat{b} = \mu_i(t)\hat{b}_i + \nu_i(t)\hat{a}_i^+$, $|\mu_i|^2 - |\nu_i|^2 = 1$. В результате в решетке образуются фононы. Скорость распада определяется выражением

$$\frac{dE_L}{dt} = \sum_i \hbar \frac{\omega_i d|\nu_i(t)|^2}{dt}, \quad (1)$$

где ω_i — частота фонона i . Задача сводится к расчету корреляционной функции

$$D_i(t; \tau) = \langle 0 | \hat{x}_i(t + \tau) \hat{x}_i(t) | 0 \rangle \simeq \frac{\hbar}{2\omega_i} \left[|\mu_i(t)|^2 e^{-i\omega_i \tau} + |\nu_i(t)|^2 e^{i\omega_i \tau} \right], \quad (2)$$

$t \gg \tau$ (мы пренебрегаем быстро осциллирующими членами $\sim \exp \pm 2i\omega_i t$).

Рассмотрим взаимодействие в приближении парных потенциалов с учетом только центральных сил. Оператор ангармонизма $(n + 1)$ -го порядка записывается как

$$\hat{H}_{anh}^{(n+1)} = \frac{2}{n} Q(t) \sum_m V_m^{(n+1)} \hat{q}_m^n, \quad n \geq 2, \quad (3)$$

где $Q(t) = A_t \cos \omega t$, A_t — зависящая от времени амплитуда моды, $V_m^{(n+1)}$ — параметры ангармонического взаимодействия $(n + 1)$ -го порядка, $\hat{q}_m = \sum_i e_{mi} \hat{x}_i$ — операторы координат соседних атомов, \hat{x}_i удовлетворяют следующему уравнению:

$$\hat{x}_i = \hat{x}_i(0) e^{-i\omega_i t} + 2A_t \sum_m e_{mi} \omega_i^{-1} V_m^{(n+1)} \times \int_0^t dt_1 \sin \omega_i(t - t_1) \cos \omega_L t_1 \hat{x}_m^n(t_1) \quad (4)$$

Подставляя это уравнение в корреляционную функцию, мы получим с учетом (1):

$$\frac{dE_L(t)}{dt} \approx -\hbar A_t^2 (n - 1) \int_0^{\omega_M} d\omega \omega \text{Sp} \left[V^{(n)} \text{Im} G(\omega_L - \omega) \times V^{(n)} D^{(n-1)}(t; \omega) \right]; \quad (5)$$

ω_M — максимальная частота фононного спектра, $G_{mm'}(t) = \sum_i \omega_{mi}^{-1} \sin \omega_i t$ — Фурье-образ функции Грина фононов, $D_{mm'}^{(n-1)}(t; \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{i\omega \tau} D_{mm'}^{n-1}(t; \tau)$, $D_{mm'}(t; \tau) = \sum_i e_{mi} e_{m'i} D_i(t; \tau)$.

В случае двухфононного распада ($n = 2$), уравнение для $D(t; \omega)$ является линейным и может быть решено

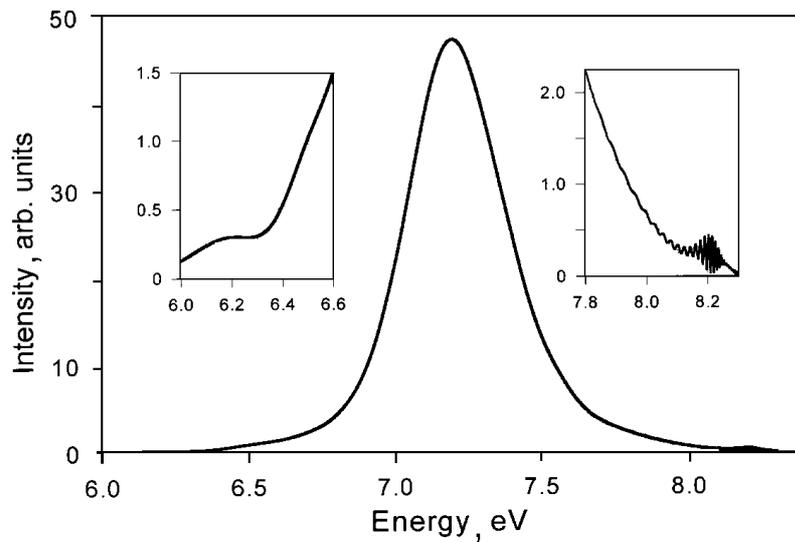


Рис. 1. Рассчитанный спектр горячей люминесценции квазимолекулы Xe_2^+ в твердом Хе. На вставках — отдельные участки спектра в увеличенном масштабе.

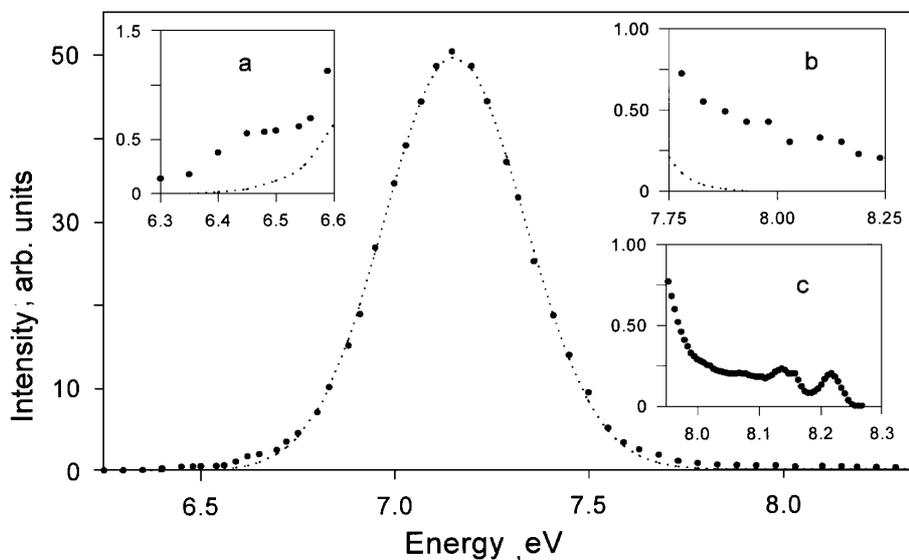


Рис. 2. Экспериментальный спектр люминесценции кристалла Хе, возбуждаемого рентгеновским излучением при температуре $T = 20\text{ К}$ [4] (обозначен точками). Прерывистой линией обозначена аппроксимация гауссовой кривой. *a* и *b* — горячая люминесценция при возбуждении рентгеновским излучением, *c* — возбуждение эксимерным лазером ArF (193 nm).

аналитически для произвольного фоновго спектра. Ответ следующий [1]:

$$D(t; \omega) \approx \frac{2}{\pi} \left| I - A_r^2 G(-\omega) V^{(3)} \right. \\ \left. \times G(\omega_L - \omega) V^{(3)} \right|^{-2} \text{Im}G(\omega) \quad (6)$$

Резольвента имеет полюса. В результате при некоторых критических амплитудах A_{cr} скорость релаксации достигает больших значений, что приводит к резкой эмиссии фононов.

В случае $n \geq 3$ уравнение для $D(t; \omega)$ нелинейно и решается аналитически только в ряде простых случаев. Однако, можно сделать следующие заключения: во-первых, для очень больших амплитуд A_r отсутствуют вещественные решения, то есть процессы с рождением трех и более фононов полностью выключаются, если амплитуда превышает определенное значение; во-вторых, для амплитуд, близких к критической, скорость трех- и более фононных процессов достигает довольно больших величин (порядка кванта колебаний), но всегда сохраняет конечное значение; в-третьих, значения $A_{cr}^{(n)}$ растут с n , причем $A_{cr}^{(n)} \sim 1 \text{ \AA}$.

Горячая люминесценция возникает при переходах $0_u^+ \rightarrow 0_g^+$ в квазимолекуле Xe_2^* . Возбужденное состояние 0_u^+ хорошо описывается потенциалом Морзе

$$V_1(R) = D_1 \left(e^{-2\alpha_1(R-R_e)} - 2e^{-\alpha_1(R-R_e)} \right) - A_1 \quad (7)$$

($D_1 = 515.53 \text{ meV}$, $R_e = 3.24 \pm 0.01 \text{ \AA}$, $A_1 = 35.75 \text{ meV}$ и $\alpha_1 = 1.91 \text{ \AA}^{-1}$). Основное состояние может быть аппроксимировано псевдопотенциалом Морзе, имеющим непрерывный спектр.

$$V_0(R) = Ae^{-2\alpha R} - \sqrt{A\varepsilon}e^{-\alpha_0 R} - A_0 \quad (8)$$

($A = 6.47 \cdot 10^5 \text{ eV}$, $\alpha_0 = 2.147 \text{ \AA}^{-1}$, $\varepsilon = \hbar^2 \alpha_0^2 \text{ a.e.}$, $A_0 = 24.3 \text{ meV}$).

Мы провели квантово-механический расчет факторов Франка-Кондона для всех уровней $n = 0-44$, определили их относительные веса, решив соответствующую систему кинетических уравнений, и просуммировали, получив нужный спектр горячей люминесценции. Рассчитанный спектр (рис. 1) содержит также вклад от нулевого колебательного уровня состояния 1_u . Получено хорошее согласие с экспериментальным спектром горячей люминесценции [4] при релаксационном прыжке вблизи $n_{cr} = 23$ (рис. 2). Осциллирующая структура на конце рассчитанного спектра является чисто квантово-механическим эффектом. Такая структура обнаружена экспериментально с применением нового метода двухфотонного возбуждения эксимерным лазером ArF (193 nm) монокристалла Хе на низких температурах (см. вставку с на рис. 1).

Работа поддержана Эстонским научным фондом, грант 2274.

Список литературы

- [1] V. Hizhnyakov. Phys. Rev. **B53**, 13 981 (1996).
- [2] А.С. Долгов. ФТТ **28**, 6, 1641 (1986).
- [3] V. Hizhnyakov, D. Nevedrov. Phys. Rev. **B56**, R2809 (1997).
- [4] R. Kink, A. Löhmus, M. Selg. Phys. Stat. Sol. (b) **107**, 479 (1981).
- [5] M. Selg. Phys. Scripta **47**, 769 (1993).
- [6] V. Hizhnyakov, D. Nevedrov. Pure Appl. Chem. **69**, 1195 (1997).