

Erzeugung sekundärer Exzitonen in festem Xenon untersucht mit Hilfe der Lumineszenzspektroskopie

Barbara Steeg, Dissertation, Fachbereich Physik, Universität Hamburg

Kurzfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Erzeugung und Relaxation sekundärer Exzitonen in festem Xenon untersucht. Die Messungen wurden an Hand des freien Exzitons mit Hilfe der energie- und zeitaufgelösten Lumineszenzspektroskopie durchgeführt. Die Abklingkurven des freien Exzitons weisen bei primärer Anregung oberhalb der Bandlücke zwei Anteile auf. Der schnell abfallende Anteil kennzeichnet bei Anregung im exzitonischen Bereich die prompte Erzeugung primärer Exzitonen. Für Anregungsenergien oberhalb einer Schwellenenergie von 17.7 eV (Summe aus Exzitonenergie und Bandlücke) wird er der prompten Erzeugung freier sekundärer Exzitonen zugeordnet. Der langsame Anteil ist je nach Probenqualität verschieden stark ausgeprägt und weist hiervon abhängig unterschiedliche Zerfallszeiten auf. Dieser Anteil kann für Anregungsenergien oberhalb der Bandlücke der Bildung sekundärer Exzitonen durch Rekombination freier Elektron-Loch Paare zugeschrieben werden. Bei Anregung oberhalb der Schwellenenergie beobachtet man eine Überlagerung der prompten Erzeugung sekundärer Exzitonen mit der verzögerten Bildung über die Rekombination.

Im Rahmen eines Elektron-Loch Rekombinationsmodells wurde der langsame Anteil der Abklingkurven für Anregungsenergien bis 1.5 eV oberhalb der Bandlücke gefittet. Unter der Annahme einer konstanten Anregungsdichte ergaben die Fits eine mit zunehmender Anregungsenergie nahezu konstant bleibende nichtstrahlende Verlustrate sowie effektive Elektronenmasse. Die Schwankungen der gefitteten Werte der effektiven Elektronenmasse entsprechen der Bandbreite der in der Literatur angegebenen, aus Bandstrukturrechnungen bestimmten Werte.

Die verschiedenen schnellen Anteile in den Abklingkurven deuten auf ein unterschiedliches Verhalten der Anregungsspektren freier und selbstlokalisierter Exzitonen hin, das allein mit zeitintegralen Messungen nicht zu untersuchen ist. Die Anregungsspektren wurden zeitintegral und simultan dazu in bis zu vier Zeitfenstern gemessen. In den kurzen Zeitfenstern zeigt sich die zur Anregung prompte Erzeugung freier primärer Exzitonen für Anregungsenergien unterhalb der Bandlücke und freier sekundärer Exzitonen im Bereich oberhalb der Schwellenenergie. Hier wird eine deutlich ausgeprägte Doppelresonanz mit derselben Intensität wie im exzitonischen Bereich beobachtet. Im stark verzögerten Zeitfenster wird die Bildung sekundärer Exzitonen über die Elektron-Loch Rekombination beobachtet. Die Doppelresonanz läßt sich im Rahmen zweier theoretischer Modelle für die Erzeugung freier sekundärer Exzitonen beschreiben: dem Modell des elektronischen Polaronenkomplexes und dem Modell der inelastischen Elektron-Elektron Streuung. Auf Grund der starken Spin-Bahn Aufspaltung in festem Xenon werden die Maxima der Doppelresonanz den $n = 1$ und $n' = 1$ Exzitonen zugeordnet, die sowohl durch den elektronischen Polaronenkomplex als auch über die inelastische Elektron-Elektron Streuung erzeugt werden. Es konnte gezeigt werden, daß die selbstlokalisierten Exzitonen auch nach primärer Anregung freier Elektron-Loch Paare über das freie Exziton gebildet werden.

Creation of Secondary Excitons in Solid Xenon investigated with Luminescence Spectroscopy

Abstract

The creation and relaxation of secondary excitons in solid xenon were investigated with energy- and time-resolved luminescence spectroscopy. The spectrally selected luminescence of the free-exciton was used as a probe for secondary exciton creation. For excitation energies above the band gap the decay curves of the free exciton consist of two components. The fast decay component observed for photon excitation within the excitonic region is typical for the prompt creation of primary excitons. This fast decay is also observed for excitation above a threshold at 17.7 eV (exciton energy plus band gap) and is therefore assigned to the creation of prompt secondary excitons. The intensity of the slow decay component as well as the decay time depends on sample quality. For excitation energies above the band gap the slow component is due to the delayed creation of secondary excitons via the recombination of electron-hole pairs. For excitation energies above the threshold a superposition of the prompt and delayed creation of secondary excitons is observed.

The slow decay component was fitted in the framework of a model of electron-hole recombination for excitation energies up to 1.5 eV above the band gap. The excitation density is assumed to be constant. With increasing excitation energy the fits result in a nearly constant non-radiative loss rate and effective electron mass. The fluctuation of the effective electron mass is in agreement with the effective electron masses obtained from band structure calculations.

Due to the fast and slow decay components a different behaviour in excitation spectra of the free and self-trapped exciton is expected. This could only be investigated using the method of time-resolved luminescence spectroscopy. Up to four different time windows and a time-integrated spectrum were measured simultaneously. In short time windows, the prompt creation of primary excitons was observed for excitation energies below the band gap. For excitation energies above the threshold the creation of prompt secondary excitons was observed in these time windows. A pronounced double resonance with the same intensity as in the excitonic region appears. In a delayed time window, the creation of secondary excitons via electron-hole recombination was observed. There exist two models which can explain the creation of free secondary excitons visible in the double resonance: the model of electronic polaron complex and the model of inelastic electron-electron scattering. Due to the strong spin-orbit splitting in solid xenon, the maxima of the double resonance were assigned to the formation of $n = 1$ and $n' = 1$ excitons which are created via the electronic polaron complex as well as the inelastic electron-electron scattering. It turned out that the self-trapped exciton is also created via the free exciton after primary excitation of free electron-hole pairs.