

## Abstract

The creation and relaxation of secondary excitons in solid Kr were investigated using energy- and time-resolved luminescence spectroscopy in vacuum ultraviolet region. The spectrally selected luminescence of the free exciton (FE) was used as a probe for secondary exciton creation. This was possible due to the good 'quality' of the samples and high purity Kr gas, used for sample growth, since the intensity of the free exciton emission line is extremely sample sensitive.

For the first time, time-resolved excitation spectra and decay curves of free exciton emission in solid Kr were systematically investigated for an excitation exceeding the band gap energy (up to 35 eV). Also luminescence of self-trapped excitons was studied in solid Kr using time-resolved methods. Additionally, high-resolution reflection spectra were measured and a new member ( $n=5$ ) of the exciton series was revealed. A series of samples were grown and investigated, demonstrating a good reproducibility of the main experimental results.

Delayed electron-hole recombination and 'prompt' (in the meaning of the time-resolution of experimental set-up) creation of secondary excitons were separated using the time-resolved experimental technique. A detailed model for the dynamics of electron-hole recombination into the FE state was developed. The delayed component of the free exciton decay curve was reproduced with model calculations including thermalization of the carriers via scattering on acoustic phonons and the effect of recombination cross-section, which depends on the actual carrier temperatures. A reasonable agreement between experiment and theory was found.

Time-resolved excitation spectra show that the 'prompt' creation of FE takes place in the region above the threshold  $h\nu=E_{th} \approx 21.7$  eV. The shape of the decay curves changes significantly above this threshold as well. The experimental threshold value is nearly equal to the sum of the band gap energy and the free exciton energy ( $E_{th}=E_g+E_{ex}$ ). In order to explain the threshold in time-resolved excitation spectra of 'prompt' processes two possibilities are discussed: (i) inelastic scattering of the electrons in the framework of the multiple-parabolic-branch band model, and (ii) creation of the electronic polaron complex. 'Prompt' creation of excitons above  $E_{th}$  is ascribed to a superposition of both processes. At threshold itself, the creation of electronic polaron complexes is the dominant process, while at higher excitation energies, electron-electron scattering may dominate.

# Erzeugung freier Exzitonen in festem Krypton, untersucht mit Hilfe der zeitaufgelösten Lumineszenzspektroskopie

## Kurzfassung

Die Erzeugung und Relaxation sekundärer Exzitonen in festem Kr wurde mittels zeit- und energieaufgelöster Lumineszenzspektroskopie im vakuumultravioletten Spektralbereich untersucht. Zur Charakterisierung der Erzeugung sekundärer Exzitonen wurde die spektral ausgewählte Lumineszenz des freien Exzitons (FE) herangezogen. Dies war aufgrund der hohen Probenqualität und der hohen Reinheit des zur Probenpräparation verwendeten Kr-Gases möglich, da die Intensität der freien Exzitonlinie stark von der Probengüte abhängt.

Zum ersten Mal wurden zeitaufgelöste Anregungsspektren und Abklingkurven der FE-Emission in festem Kr für Anregungen oberhalb der Bandkante (bis 35 eV) systematisch untersucht. Zusätzlich wurde auch die Lumineszenz von lokalisierten ('self-trapped') Exzitonen in festem Kr durch zeitaufgelöste Spektroskopie betrachtet. Weiterhin wurden hochaufgelöste Reflexionsspektren gemessen und daraus ein weiteres Element der Exzitonenserie ( $n=5$ ) bestimmt. Die Messungen wurden an verschiedenen Proben wiederholt und zeigen eine gute Reproduzierbarkeit der experimentellen Ergebnisse.

Mittels der zeitaufgelösten Meßtechnik kann zwischen verzögerter Elektron-Loch-Rekombination und 'prompter' (im Rahmen der experimentellen Zeitauflösung) Erzeugung sekundärer Exzitonen unterschieden werden. Es wurde ein detailliertes Modell der Dynamik der Elektron-Loch-Rekombination in den FE-Zustand aufgestellt. Die verzögerte Komponente der Abklingkurven für das FE wurde mittels Modellrechnungen reproduziert, die die Thermalisierung der Ladungsträger durch Streuung an akustischen Phononen beinhalten und die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes der Rekombination von der Ladungsträger-temperatur berücksichtigen. Modellrechnungen und experimentelle Daten weisen eine gute Übereinstimmung auf.

Die zeitaufgelösten Anregungsspektren zeigen, daß eine 'prompte' Erzeugung des FE im Bereich oberhalb der Schwelle von  $h\nu=E_{th} \approx 21.7$  eV statt findet. Dies spiegelt sich ebenfalls in der veränderten Form der Abklingkurven oberhalb der Schwelle wider. Der experimentelle Schwellenwert entspricht nahezu der Summe der Bandlückenenergie und der Energie des FE ( $E_{th}=E_g+E_{ex}$ ). Zur Erklärung dieses Schwellenwertes werden zwei Modelle diskutiert: (i) inelastische Streuung der Elektronen im Rahmen des '*multiple-parabolic-branch band*' Modells, und (ii) Erzeugung des elektronischen Polaron-Komplexes. Die 'prompte' Erzeugung von Exzitonen oberhalb von  $E_{th}$  wird einer Überlagerung aus beiden Prozessen zugeordnet. Nahe an der Schwelle ist die Erzeugung des elektronischen Polaron-Komplexes der dominante Prozess, während Elektron-Elektron-Streuung bei höheren Anregungsenergien überwiegen könnte.