

І. Ю. Голіней, В. Й. Сугаков, А. А. Чернюк

*Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ***ВПЛИВ ВЗАЄМОДІЇ МІЖ ЕЛЕКТРОННИМИ ЗБУДЖЕННЯМИ
НА ЛЮМІНЕСЦЕНЦІЮ З ОБЛАСТІ ТРЕКУ ШВИДКОЇ ЗАРЯДЖЕНОЇ ЧАСТИНКИ**

Досліджено вплив взаємодії між електронними збудженнями (екситонами) на вихід світлового випромінювання з треку високоенергетичної зарядженої частинки в діелектричному середовищі. Вважається, що після створення в треку екситони рухаються від його ядра дифузійно. Анігіляція екситонів та нерадіаційна складова часу життя екситонів приводять до втрат, що проявляються як зменшення інтенсивності люмінесценції. Розраховано залежність втрат від напрямку руху високоенергетичної зарядженої частинки відносно кристалографічних осей для кристалів з анізотропією коефіцієнта дифузії екситонів. Динамічна взаємодія між екситами призводить до зміни їхнього руху, впливає на відстань між ними, а отже, на втрати на анігіляцію. Наведено оцінки втрат залежно від взаємодії – зростання при притяганні екситонів, зменшення при відштовхуванні. Оцінено можливість конденсації екситонів у треку в неорганічних напівпровідниках.

Ключові слова: трек, високоенергетична частинка, екситон, люмінесценція, анізотропія.

1. Вступ

Сцинтиляційні лічильники елементарних частинок широко використовуються в науці і техніці [1] завдяки високій ефективності реєстрації. Оскільки сцинтиляція виникає в треку, утвореному в речовині зарядженою частинкою, вивчення процесів, що відбуваються в ньому, є актуальним для розуміння як роботи лічильника зокрема, так і впливу опромінення на речовину загалом [2].

Високоенергетична заряджена частинка, проходячи через речовину, залишає за собою тривкий слід із радіаційних дефектів – зміщення атомів із положень рівноваги, який спостерігають експериментально протягом значного часу після утворення. Однак такий слід, який зазвичай називають треком, є тільки залишком від послідовності різноманітних процесів, що відбуваються в речовині. Із зарядженою частинкою взаємодіє перш за все електронна підсистема. В околі траєкторії зарядженої частинки завдяки електромагнітній взаємодії виникають електронні збудження з високою енергією, які з часом релаксують до найнижчого збудженого стану. Енергія, вивільнена під час релаксації, передається атомам системи. Кінетична енергія атомів (молекул) збільшується, що призводить до підвищення температури в області треку, тобто до появи так званого теплового піка. Зазвичай унаслідок теплопровідності процес релаксації температури дуже швидкий, майже рівноважна температура встановлюється за час порядку 10^{-12} с [3 - 5]. Частина атомів речовини покидає свої вузли, утворюючи радіаційні дефекти. Якщо зміни в треку досить істотні, у речовині може відбуватися фазове

перетворення. Для великої кількості дефектів кристалічної ґратки це явище спостерігалось експериментально в локальних областях [6 - 8].

Після завершення процесу термалізації в околі траєкторії зарядженої частинки протягом певного часу існують електронні збудження, що релаксували до найнижчого збудженого стану. Подальша релаксація – відносно повільний процес. У чистих напівпровідниках та неорганічних кристалах такими збудженнями є екситони. В органічних кристалах при кімнатних температурах екситони є некогерентними – це електронні збудження окремих молекул, що переміщуються в кристалі стрибками від однієї молекули до іншої. Безрадіаційний перехід від найнижчого збудженого стану до основного в багатьох кристалах є малоімовірним, оскільки вимагає участі великої кількості фононів. Існують різноманітні канали рекомбінації екситонів. Для сцинтиляторів найважливіший серед них – радіаційний, тобто через випромінювання кванта світла. Частка радіаційного випромінювання екситонів у порівнянні з безрадіаційними втратами впливає на квантовий вихід детектора.

В околі траєкторії проходження зарядженої частинки концентрація екситонів висока і можуть проявлятися ефекти взаємодії між ними, впливаючи на люмінесценцію. Одним із таких ефектів є екситон-екситонна анігіляція – Оже-процес, в якому при зіткненні два екситони зникають, а кристал переходить у високозбуджений стан, після релаксації якого утворюється або один екситон, або вся енергія переходить в тепло. Екситон-екситонна анігіляція є конкурентом радіаційному каналу рекомбінації, джерелом безрадіаційних втрат. Можлива також динамічна взаємодія між екситами – притягання або відштовхування.

© І. Ю. Голіней, В. Й. Сугаков, А. А. Чернюк, 2015

Якщо екситони притягаються, вони можуть утворити конденсовану фазу, що існуватиме певний час, доки концентрація не зменшиться внаслідок рекомбінації. У напівпровідниках прикладом такої фази є електрон-діркова рідина, яку спостерігали в об'ємі напівпровідника в умовах стаціонарного опромінення [9].

У даній роботі проводиться теоретичний аналіз кількох ефектів, що можуть бути зумовлені взаємодією між збудженнями. Екситон-екситонна анігіляція зменшує квантовий вихід люмінесценції з треку. Її внесок залежить від швидкості розбігання екситонів з області з високою концентрацією. Якщо дифузія екситонів анізотропна, то квантовий вихід люмінесценції залежатиме від орієнтації треку відносно осей кристала. Цю залежність досліджено в розділі 3. Розділ 4 присвячено аналізу можливого впливу динамічної взаємодії між екситонами на квантовий вихід. Проаналізовано також умови, необхідні для виникнення конденсованої фази екситонів у треку.

2. Модель треку та електронних збуджень у ньому

За сучасними уявленнями радіаційної фізики та теорії трекових детекторів [1 - 3] збудження важкими зарядженими частинками із лінійною передачею енергії понад 10 МеВ/см (α -частинками, протонами тощо) призводить до формування трекових областей із симетрією, близькою до циліндричної. У поперечному перерізі цієї області виділяють внутрішню частину (ядро треку) та зовнішню оболонку (ореол треку). Радіус ядра треку визначають як відстань, на якій перенос енергії вторинними електронами починає перевищувати перенос енергії через інші канали (зокрема, на іонізацію, збудження електронних оболонок атомів середовища, радіаційні втрати тощо). Він становить кілька нанометрів. Ореол треку обмежується пробігом найбільш високоенергетичних вторинних електронів. Форму радіального перерізу первинних збуджених частинок у треку часто моделюють гауссовою кривою [1] із параметром, що дорівнює радіусу ядра треку.

У даній роботі ми будемо досліджувати просторовий розподіл екситонів навколо треку залежно від часу при певних моделях руху частинок та взаємодії між ними. Початковими умовами є число екситонів N_0 , які утворилися після процесів термалізації та релаксації високоенергетичних збуджень до найнижчого збудженого стану на одиниці довжини пробігу зарядженої частинки, а також радіальний розподіл їхньої густини. Число екситонів, утворених зарядженою частин-

кою на одиниці довжини треку, визначається енергетичними втратами зарядженої частинки внаслідок електромагнітної взаємодії з речовиною сцинтиляційного матеріалу й залежить від енергії частинки:

$$N_0 = \beta \frac{(-dE/dz)}{E_1}, \quad (1)$$

де E – енергія частинки; E_1 – енергія утворення одного екситону; β – певний коефіцієнт ефективності утворення екситону, що залежить від втрат енергії зарядженої частинки при релаксації на інші процеси, зокрема на тепловиділення.

Значення N_0 залежить від енергії зарядженої частинки та матеріалу середовища. Оскільки довжина дифузії є природним масштабом довжини для задач, пов'язаних із рухом екситонів, то важливо знати N_0 в розрахунку на цю довжину. Значення довжини дифузії в органічних напівпровідниках може лежати в широкому діапазоні від кількох нанометрів до мікрона. Великий розкид існує навіть в експериментальних значеннях для однієї й тієї ж величини, залежно від температури й методу вимірювання [10]. Для наших розрахунків ми обрали довжину дифузії, рівною 30 нм, що приблизно відповідає її значенню для антрацену при кімнатній температурі. Якщо для оцінки кількості утворених екситонів взяти втрати енергії 100 МеВ/см і вважати, що на утворення одного екситону потрібно приблизно 3,5 еВ енергії, то на одиниці довжини (на довжині дифузії) утворюватиметься приблизно 100 екситонів.

Радіальний розподіл густини екситонів будемо задавати гауссовою кривою

$$n(\rho)|_{t=0} = \frac{N_0}{2\pi\sigma^2} \exp\left(-\frac{\rho^2}{2\sigma^2}\right), \quad (2)$$

де $n(\rho)$ – густина екситонів на віддалі ρ від осі циліндра; σ – півширина гауссового розподілу ($\sigma^2 = x^2 = y^2$). Надалі σ називатимемо радіусом треку.

Вплив нелінійних ефектів на квантовий вихід люмінесценції залежить від густини створених екситонних збуджень та швидкості розбігання екситонів у порівнянні зі швидкістю їхньої рекомбінації.

3. Аналіз впливу анізотропії дифузії збуджень на квантовий вихід випромінювання

Одним із проявів взаємодії частинок є анігіляція, яка проявляється в тому, що два екситони зникають і система переходить до високозбу-

дженого стану, який з часом релаксує до основного. Це один із безрадіаційних каналів загибелі екситонів. Ефективність анігіляції пропорційна ймовірності зіткнення екситонів і зменшується зі зменшенням локальної густини екситонів, чому сприяє дифузія. У кристалах дифузія може бути анізотропною, що може призвести до залежності інтенсивності випромінювання від орієнтації треку щодо кристалографічних осей [11].

Розглянемо випадок, коли на довжині треку порядку ширини σ енергія частинки змінюється неістотно і величина N_0 залишається сталою. Розпливання частинок від центра треку є набагато повільнішим процесом, ніж створення треку. Дослідимо, як змінюватиметься з часом локальна та інтегральна густина екситонів, початковий радіальний розподіл яких у площині XY , нормальній до напрямку руху частинки, що створює трек, визначається залежністю (2). Анігіляцію частинок вважатимемо пропорційною квадрату їхньої густини.

Для анізотропного кристала рівняння дифузії екситонів залежить від орієнтації напрямку треку відносно кристалографічних осей. Ми розглядатимемо одновісний кристал і проілюструємо ефект впливу анізотропії дифузії на вихід люмінесценції двома випадками: 1) частинка, що створює трек, рухається вдовж осі кристала, 2) частинка рухається перпендикулярно до осі кристала. В обох цих випадках після встановлення однорідної температури зміна розподілу екситонів у площині, перпендикулярній до треку, визначатиметься рівнянням дифузії у діагональній формі:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 n}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 n}{\partial y^2} - \frac{n}{\tau_{tot}} - \gamma n^2, \quad (3)$$

де n – густина частинок; D_x (D_y) – коефіцієнти дифузії вздовж осі X (Y) відповідно; γ – коефіцієнт анігіляції, незалежний від напрямку, оскільки процеси відбуваються на близьких відстанях;

$\tau_{tot} = \frac{\tau_\gamma \tau_q}{\tau_\gamma + \tau_q}$ – час життя екситонів; τ_r – радіаційний, τ_q – нерадіаційний час життя, зумовлений руйнуванням екситонів на дефектах і внаслідок багатофонових процесів. У кристалах із великим радіаційним квантовим виходом $\tau_q \gg \tau_r$, і тоді $\tau_r \approx \tau_{tot}$.

Кількість фотонів, випромінених екситонами на одиниці довжини треку, дорівнює

$$L = \int dt \int dS \cdot \frac{n}{\tau_r}. \quad (4)$$

Виходом люмінесценції, пов'язаним із процесами випромінювання екситонів після їхнього створення, є величина $Q_{ex} = L / N_0$.

Обравши одиницями довжини, часу, концентрації та коефіцієнта анігіляції

$$l_u = \sqrt{D_x \tau}, \quad t_u = \tau_{tot}, \quad n_u = \frac{1}{(D_x \tau_{tot})^{3/2}},$$

$$\gamma_u = D_x \sqrt{D_x \tau_{tot}} \quad (5)$$

та ввівши безрозмірні величини, зведемо рівняння дифузії (3) і випромінювання (4) до вигляду

$$\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \tilde{t}} = \frac{\partial^2 \tilde{n}}{\partial \tilde{x}^2} + \lambda \frac{\partial^2 \tilde{n}}{\partial \tilde{y}^2} - \tilde{n} - \tilde{\gamma} \tilde{n}^2, \quad (6)$$

$$L = \int dt \int dS \cdot n, \quad (7)$$

де $\lambda = D_y / D_x$ – параметр анізотропії дифузії екситонів; $\tilde{n} = n l_u^3$, $\tilde{N} = N l_u$, $\tilde{\gamma} = \gamma / \gamma_u$,

$$Q_{ex} = \frac{\tau_{tot}}{\tau_r} \int dt \int dS \tilde{N} \tilde{n}. \text{ Нехай спеціальним вибором}$$

координатних осей $\lambda \in [0; 1]$.

В обраних одиницях безрозмірна величина $\tilde{N}_0 = N_0 l_u$ визначає кількість екситонів, створених на довжині дифузії в початковий момент після проходження треку. У подальшому знак «тильда», що позначає безрозмірні одиниці, будемо опускати.

Проінтегрувавши рівняння (6) у площині XY , отримаємо

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -N - \gamma \int n^2 dS, \quad (8)$$

де $N \equiv \int n dS$ – загальна кількість екситонів на відріжку треку, рівному довжині дифузії, у момент часу t . За відсутності анігіляції ($\gamma = 0$)

$N = N_0 e^{-t}$ (де N_0 – повне число частинок на довжині дифузії у початковий момент). У цьому разі та у випадку відсутності безрадіаційних процесів при $\tau_q \gg \tau_r$, $L = N_0$, і число випромінених фотонів не залежить від початкового розподілу частинок і величини коефіцієнта дифузії.

Рівняння (6) розв'язувалося чисельно на квадраті в площині XY , розміри якого значно перевищували півширину початкового розподілу екситонів σ , так що на границях області густиною частинок можна знехтувати. Точних відомостей про радіус треку в літературі немає, тому ця

величина розглядалася як параметр задачі. Розумно оцінити діапазон її значень у межах кількох десятків нанометрів, тому величина σ обиралася порядку або меншою від дифузійної довжини.

Дослідимо спочатку систему без анізотропії ($\lambda = 1$). Якщо $\gamma \neq 0$, число випромінених фотонів на одиницю довжини (на дифузійну довжину) різко зменшується зі скороченням радіуса треку σ (рис. 1). Така тенденція пояснюється тим, що при малих σ розподіл має форму вузького піка з високою концентрацією частинок, тому член з анігіляцією, пропорційний n^2 , відіграє істотнішу роль у зменшенні густини екситонів.

Випромінювання екситонів зменшується зі зростанням коефіцієнта анігіляції (рис. 2), оскільки член з анігіляцією призводить до швидшої

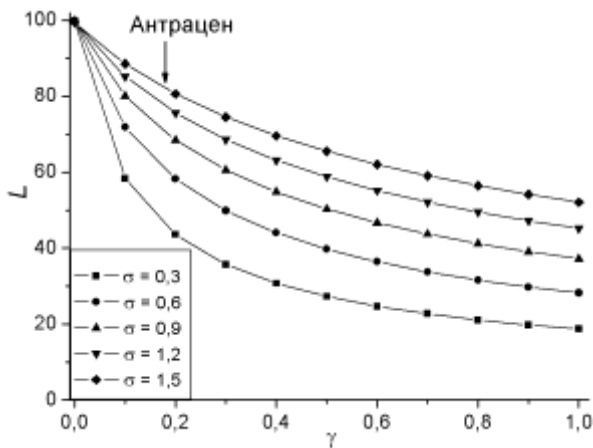


Рис. 1. Залежність кількості квантів світла, випроміненого з області треку, на одиницю довжини від коефіцієнта анігіляції для різних радіусів треку. Початкове число екситонів на одиницю довжини $N_0 = 100$.

Як уже зазначалось вище, при розгляді анізотропії ми обмежилися двома випадками. Тоді, коли трек зарядженої частинки паралельний осі кристала, дифузія в площині, перпендикулярній до треку, ізотропна $D_x = D_y$. Тоді, коли трек зарядженої частинки перпендикулярний осі кристала, дифузія в площині, нормальній до треку, анізотропна $D_x \neq D_y$. Анігіляція екситонів, а отже, вихід люмінесценції, у цьому випадку залежатиме від параметра $\lambda = D_y / D_x$.

Результати розрахунків цієї залежності для різних значень коефіцієнта анігіляції наведено на рис. 3. Значення $\lambda = 1$ відповідає як ізотропному кристалу, так і випадку треку, паралельного осі одновісного кристала. Видно, що анізотропія найбільш суттєва у випадку проміжних значень коефіцієнта анігіляції. За відсутності анігіляції всі екситони гинуть урешті-решт, випромінюючи квант світла, а у випадку великого γ вони гинуть безрадіаційно швидше, ніж встигають розбігтися.

загибелі екситонів. Оскільки початкове число екситонів на одиницю довжини обрано однаковим, то ефект проявляється тим різкіше, чим вузчим є початковий розподіл частинок (менший радіус треку σ) і, відповідно, вищі густини екситонів в околі центра треку.

Чисельне значення коефіцієнта анігіляції для кристала антрацену відоме для кімнатних температур [8]. У безрозмірних одиницях воно становить 0,17. Відповідне значення позначено стрілочкою на рис. 1.

Розглянемо тепер анізотропний кристал, в якому розповсюдження екситонів уздовж різних напрямків неоднакове, й у напрямку швидшої дифузії анігіляція менш ефективна. Анізотропія приводить до залежності виходу люмінесценції від напрямку руху зарядженої частинки.

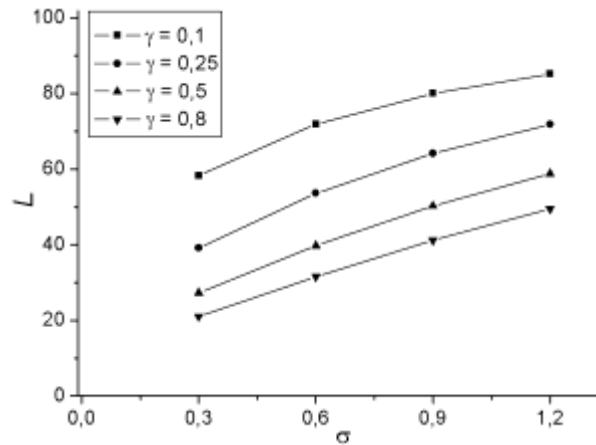


Рис. 2. Залежність кількості квантів світла, випромінених з одиниці довжини треку, від радіуса треку для різних коефіцієнтів анігіляції. $N_0 = 100$.

Іншим важливим параметром задачі є початкова кількість екситонів, створених зарядженою частинкою на одиниці довжини в треку. Зі збільшенням N_0 , що залежить від таких факторів, як енергія високоенергетичної частинки, її маса, густина речовини тощо, ефективність випромінювання, тобто відношення кількості квантів до початкового числа екситонів, зменшується (рис. 4). Це зменшення зумовлене тим, що при вищій густині екситонів процеси анігіляції, як головного механізму безрадіаційної загибелі екситонів у нашій задачі, мають більшу ймовірність.

Втрати енергії зарядженою частинкою, а отже, і густина створених екситонів неоднакові вздовж треку і досягають найбільшого значення в кінці пробігу, коли енергія частинки мала. Характерний масштаб сповільнення частинки набагато більший від дифузійної довжини екситонів, тому на окремій ділянці її руху; енергію частинки та її здатність народжувати екситони можна вважати сталими.

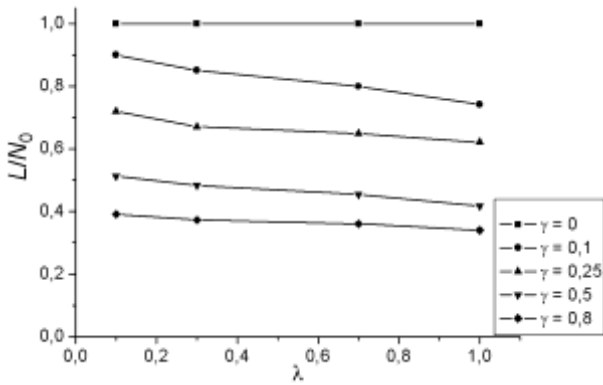


Рис. 3. Залежність кількості випромінених квантів світла від параметра анізотропії дифузії екситонів λ для різних значень параметра анігіляції екситонів γ . Параметри системи: $N_0 = 100$, $\sigma = 0,6$.

Ті ж міркування справедливі у випадку, коли люмінофор є тонкою плівкою. Однак для товстого люмінофора для оцінки повного числа випромінених квантів світла необхідно врахувати зміну енергії зарядженої частинки вздовж треку.

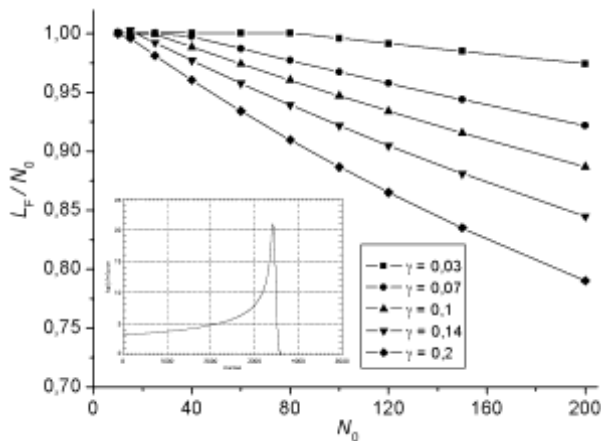


Рис. 5. Залежність ефективності випромінювання з усієї довжини треку від початкового числа екситонів на одиницю довжини на початку треку (від початкової енергії зарядженої частинки) для різних значень коефіцієнта анігіляції. Дифузія ізотропна. Радіус початкового профілю розподілу становить 3,3 нм. На вставці для прикладу показано втрати енергії на одиниці довжини в полієфірних плівках у треках протонів з енергією 20 MeV залежно від глибини ([12, с. 46]).

Характерний графік залежності величини енергетичних втрат від пробігу наведено на вставці на рис. 5. Вважаючи, що густина екситонів на дифузійну довжину залежить від координати вздовж треку, тобто є функцією $N_0(z)$, для знаходження сумарної інтенсивності люмінесценції світловий вихід на одиницю довжини треба проінтегрувати вздовж треку

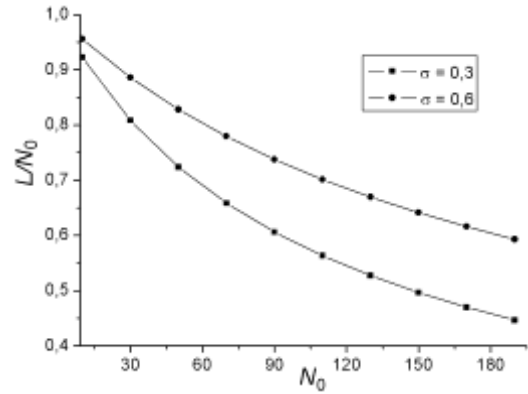


Рис. 4. Залежність ефективності випромінювання L/N_0 від початкового числа частинок на одиницю довжини для різних радіусів треку. Коефіцієнт анігіляції $\gamma = 0,1$.

$$L_F = \int_0^l L(z) dz, \quad (9)$$

де l – довжина пробігу зарядженої частинки.

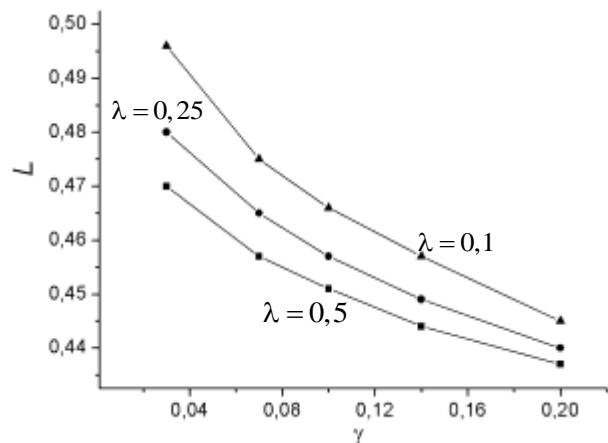


Рис. 6. Залежність ефективності випромінювання від коефіцієнта анігіляції для різних значень анізотропії дифузії. Радіус початкового профілю розподілу 3,3 нм.

Результат обчислення представлено на рис. 5, де по осі ординат зображено ефективність випромінювання $L_F/N_0(0)$. Тут під $N_0(0)$ розуміємо число створених екситонів на довжину дифузії на початку треку (при $z = 0$).

Окремо обчислено повний світловий вихід у випадку анізотропної дифузії (рис. 6).

4. Вплив динамічної взаємодії на квантовий вихід

Крім анігіляції екситони можуть притягатися або відштовхуватися, тобто взаємодіяти динамічно. Розглянемо, як це може вплинути на перерозподіл частинок при врахуванні дифузії. При цьому ми вважатимемо, що кристал, в якому ру-

хається заряджена частинка, є ізотропним. Дослідимо динаміку розподілу екситонів навколо треку з урахуванням взаємодії між ними і вважаючи, що рух частинок є дифузійним. Замість рівняння (3) матимемо

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\text{div} \vec{j} - \frac{n}{\tau} - \gamma n^2, \quad (10)$$

де густина потоку екситонів

$$\vec{j} = -D \left(\vec{\nabla} n - \frac{n \vec{F}}{k_B T} \right). \quad (11)$$

Сила взаємодії визначається потенціальною енергією $\vec{F} = -\vec{\nabla} U$, де $U(\vec{r})$ потенціальна енергія екситону в точці \vec{r} в полі інших екситонів. Остання може бути обчислена через потенціал міжчастинкової взаємодії у вигляді

$$U(\vec{r}) = \int n(\vec{r}') \cdot V(\vec{r} - \vec{r}') d\vec{r}'. \quad (12)$$

Оскільки ширина просторового розподілу екситонів набагато більша від характерної відстані, на якій змінюється потенціал міжекситонної взаємодії, $n(\vec{r}')$ можна вважати сталим там, взявши його в точці \vec{r} . Тоді можна записати

$$\vec{F} = -A \cdot \vec{\nabla} n, \quad (13)$$

де позначено $A \equiv \int V(\vec{r}') d\vec{r}'$.

Підставивши рівняння (11) - (13) у рівняння (10), зведемо останнє до вигляду

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \Delta n + \frac{D}{k_B T} \vec{\nabla} \left(n \cdot A \vec{\nabla} n \right) - \frac{n}{\tau} - \gamma n^2, \quad (14)$$

або в безрозмірних одиницях

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \Delta n + \vec{\nabla} \left[n \vec{\nabla} (a n) \right] - n - \gamma n^2, \quad (15)$$

де позначено $a \equiv \frac{A}{k_B T l_u^3}$.

Для оцінки величини параметра динамічної взаємодії можна застосувати модель, в якій екситони малого радіуса взаємодіють між собою тільки на найближчих сусідах. Тоді $A = N_n V_0 b^3$, де N_n – число найближчих сусідів для молекули в

кристалі; V_0 – характерна енергія взаємодії для екситонів на сусідніх молекулах; b – відстань між сусідніми молекулами в кристалі. Параметр динамічної взаємодії a зручно записати у вигляді

$$a = \frac{N_n V_0}{k_B T} \left(\frac{b}{l_u} \right)^3. \quad (16)$$

Для молекулярних кристалів b порядку 0,8 – 1,0 нм, довжина дифузії порядку 30 нм, а тому куб відношення цих двох величин – величина мала. Зрозуміло, що параметр динамічної взаємодії може бути суттєвим або при низьких температурах, або при сильній взаємодії між екситонами. Для більшості органічних речовин при кімнатних температурах динамічна взаємодія не має суттєвого значення, оскільки для цього параметр a повинен бути хоча б одного порядку з параметром γ , що відповідає за анігіляцію екситонів.

Рівняння (15) – нелінійне двовимірне феноменологічне рівняння, що описує просторово-часовий розподіл екситонів навколо треку. Розв'язок цього рівняння знаходився числовим інтегруванням, аналогічно випадку без урахування динамічної взаємодії. Утім ми не будемо наводити результатів розрахунків, оскільки при реальних значеннях параметра a ефект динамічної взаємодії незначний, а область прояву цікавих ефектів відповідає дуже великим значенням цього параметра. Обмежимося якісним аналізом внеску динамічної взаємодії в перебіг розбігання початкового профілю екситонної густини й люмінесценції.

Додатні значення параметра a відповідають відштовхуванню між екситонами. Це відштовхування сприяє розбігання екситонів і запобігає їхній анігіляції. Тобто відштовхування між екситонами по суті еквівалентне зменшенню коефіцієнта анігіляції, а отже, збільшенню ефективного виходу люмінесценції.

Від'ємні значення параметра a відповідають притяганню між екситонами, що сприяє анігіляції, а отже, зменшенню виходу люмінесценції. У випадку малого коефіцієнта анігіляції, тобто при $\gamma \ll a$, може утворитися конденсована фаза екситонів. Більші значення γ перешкоджають конденсації, оскільки екситони тоді встигають проанігілювати швидше, ніж зібратися в рідку фазу. Однак при великих a та малих γ гасіння люмінесценції стає значним, що може бути свідченням на користь динамічної взаємодії між екситонами.

Як ми вже зазначали, значення параметра динамічної взаємодії для реальних органічних кристалів малі. Однак можливі системи, в яких вза-

смердія між екситонами може бути значною. До таких систем належать органічні кристали з дипольними молекулами, дипольний момент яких змінюється в збудженому стані. У таких кристалах взаємодія між екситонами має диполь-дипольний характер, екситони можуть притягатися й відштовхуватися на значних відстанях [13]. У таких системах сильне гасіння люмінесценції, зумовлене конденсацією екситонів, у принципі можливе, що вимагає окремого дослідження.

Торкнемося ще одного питання, пов'язаного зі взаємодією між екситонами в треку зарядженої частинки в напівпровідниках, де виникають екситони великого радіуса. Відомо, що при високій густині електронних збуджень взаємодія між ними може призвести до фазових переходів в електронній підсистемі збудженого кристала і виникнення електронно-діркової рідини. Конденсовані фази збуджень спостерігалися в напівпровідниках при інтенсивному освітленні у вигляді електрон-діркових крапель [9, 14]. Виникає запитання, чи можлива конденсація електронних збуджень, що утворюються при проходженні через кристал єдиної зарядженої частинки. Для розрахунків візьмемо непрямоzonні напівпровідники, в яких екситони мають великий час життя, достатній, щоб вони могли зібратися в краплю зі значного об'єму. Мінімальний розмір крапель, що спостерігалися в кремнії, 0,1 мкм. При густині екситонів у конденсованій фазі $n_c = (1,2 \pm 0,5) \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ найменша крапля містить приблизно 5000 екситонів. Втрати швидкого протона на електромагнітні збудження дорівнюють $-\frac{1}{\rho} \cdot \frac{dE}{dx} = 20,12 \text{ MeV} \cdot \text{см}^2/\text{г}$, або приблизно

$4.6 \cdot 10^7 \text{ eV}/\text{см}$. Якщо вважати, що на створення електрон-діркової пари в кремнії потрібно 3,5 eV, то для утворення 5000 екситонів протону потрібно пробігти 3,8 мкм. Збирання екситонів із довжини, що перевищує радіус краплі в 38 разів, видається малоюмовірним. Для того щоб краплі

утворювалися, необхідно, щоб утворювалося більше екситонів на одиницю довжини. За формулою Бете - Блоха енергетичні втрати збільшуються при збільшенні заряду частинки та зменшенні її маси. Таким чином, достатня для утворення електрон-діркових крапель густина екситонів може виникати або в разі багатократно заряджених швидких частинок, або в разі легких заряджених частинок, наприклад мюонів. Можливість реалізації такого процесу вимагає додаткового дослідження.

5. Обговорення результатів і висновки

У роботі розглянуто процеси динаміки електронних збуджень у треку високоенергетичної частинки і те, як ці процеси впливають на сцинтиляцію. В органічних напівпровідниках найважливішим процесом взаємодії екситонів при великій густині є анігіляція. Цей безрадіаційний процес є конкурентом випромінювання квантів світла. Він має тим більше значення, чим довше підтримується висока густина екситонів. Дифузійне розбігання екситонів із області високої густини збільшує інтегральну інтенсивність висвітлювання. Моделювання розбігання екситонів у тому випадку, коли воно анізотропне, показало, що інтенсивність випромінювання з треку частинки може залежати від орієнтації треку щодо кристалографічних осей. Окрім анігіляції, у роботі розглянуто динамічну взаємодію між екситонами. Притягання стоїть на заваді дифузійному розбіганню, а отже, сприяє підсиленню процесів анігіляції та зменшенню світлового виходу.

Досліджено також питання про можливість утворення електрон-діркових крапель у неорганічних напівпровідниках при проходженні єдиної частинки. Показано, що густина електронних збуджень у треку, утвореному протоном у кремнії, недостатня для їхньої конденсації у краплю, однак існує можливість виникнення крапель у треках частинок із більшим енерговиділенням на одиницю пробігу – багатозарядних ядер та легких частинок на зразок мюона.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Галунов Н.З., Тарасенко О.А. Формирование треков ионизирующих излучений в органических конденсированных средах. - Харьков: ИСМА, 2011. - 480 с.
2. Митерева А.М. Теоретические представления о формировании и эволюции треков заряженных частиц // УФН. - 2002. - Т. 172, № 10. - С. 1131 - 1164.
3. Ливши И.М., Каганов М.И., Танатаров Л.В. К теории радиационных изменений в металлах // Атомная энергия. - 1959. - Т. 6. - С. 391 - 402.
4. Вавилов В.С. Действие излучения на полупроводники. - М.: Физматгиз, 1963. - 264 с.
5. Вавилов В.С., Кекелидзе Н.П., Смирнов Л.С. Действие излучения на полупроводники. - М.: Наука, 1988. - 190 с.
6. Twerenbold Damian. Cryogenic particle detectors // Reports on Progress in Physics. - 1996. - Vol. 59, No. 3. - P. 349 - 426.
7. Cryogenic Particle Detection (edited by Christian Enss) // Topics in applied physics. Vol. 99. - Springer, 2005. - 507 p.
8. Giuliani A. Neutrino physics with low-temperature detectors // Journal of Low Temperature Physics. - 2012. - Vol. 167. - P. 991 - 1003.

9. Келдыш Л.В., Козлов А.Н. Коллективные явления экситонов в полупроводниках // ЖЭТФ. - 1968. - Т. 54, № 3. - С. 978 - 993.
10. Электронные процессы в органических молекулярных кристаллах. Перенос, захват, спиновые эффекты / Под общей ред. Э. А. Силиныша. - Рига: Зинатне, 1992. - 364 с.
11. Жевандров Н.Д. Оптическая анизотропия и миграция энергии в молекулярных кристаллах. - М.: Наука, 1987. - 168 с.
12. Schiavi A.M.M. Study of laser produced plasmas by X-ray and proton radiography // PhD thesis, Imperial College of Science, Technology and Medicine. - London, 2003. - 182 p.
13. Spackman M.A., Munshi P., Dittrich B. // Chem-PhysChem. - 2007. - Vol. 8, No. 14. - P. 2051 - 2063.
14. Райс Т., Хенсел Дж., Филлипс Т., Томас Г. Электронно-дырочная жидкость в полупроводниках. - М.: Мир, 1980. - 352 с.

І. Ю. Голиней, В. І. Сугаков, А. А. Чернюк

Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ

ВЛИЯНИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ МЕЖДУ ЭЛЕКТРОННЫМИ ВОЗБУЖДЕНИЯМИ НА ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЮ ИЗ ОБЛАСТИ ТРЕКА БЫСТРОЙ ЗАРЯЖЕННОЙ ЧАСТИЦЫ

Исследовано влияние взаимодействия между электронными возбуждениями (экситонами) на выход светового излучения из трека высокоэнергетической заряженной частицы в диэлектрической среде. Считается, что после создания в треке экситоны двигаются от его ядра диффузно. Аннигиляция экситонов и нерадикационная составляющая времени жизни экситонов приводят к потерям, проявляющимся как уменьшение интенсивности люминесценции. Рассчитано зависимость потерь от направления движения высокоэнергетической заряженной частицы относительно кристаллографических осей для кристаллов с анизотропией коэффициента диффузии экситонов. Динамическое взаимодействие между экситонами приводит к изменению их движения, влияет на расстояние между ними и, следовательно, на потери на аннигиляцию. Приведены оценки потерь в зависимости от взаимодействия – возрастание при притяжении экситонов, уменьшение при отталкивании. Оценена возможность конденсации экситонов в треке в неорганических полупроводниках.

Ключевые слова: трек, высокоэнергетические частицы, экситон, люминесценция, анизотропия.

I. Yu. Goliney, V. I. Sugakov, A. A. Chernyuk

Institute for Nuclear Research, National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv

EFFECT OF INTERACTION BETWEEN ELECTRONIC EXCITATIONS ON LUMINESCENCE FROM FAST CHARGED PARTICLE'S TRACK'S REGION

The paper studies the effect of the interaction between the electronic excitations (excitons) on the light emission yield of the high energy charged particle in the dielectric medium. It is assumed that after being created in the track, the excitons diffuse from its core. Exciton annihilation and the non-radiative part of its lifetime contribute to the losses that manifest themselves as the decrease of the luminescence intensity. The dependence of the losses on the direction of propagation of the high energy charged particle with respect to the crystal axes for crystals with the exciton diffusion anisotropy is calculated. Dynamic interaction between excitons leads to the changes of their motion, affects the inter-exciton distance, and, hence, causes losses due to annihilation. The estimates of the losses are made depending on the interaction: an increase for the exciton attraction, a decrease for the repulsion. The possibility of the exciton condensation in the track region in the inorganic semiconductors is evaluated.

Keywords: track, high energy particles, exciton, luminescence, anisotropy.

REFERENCES

1. Galunov N.Z., Tarasenko O.A. Formation of the ionizing radiation tracks in organic condensed media. - Kharkov: ISMA, 2011. - 480 p. (Rus)
2. Miterev A.M. // UFN. - 2002. - Vol. 172, No. 10. - P. 1131 - 1164. (Rus)
3. Livshi I.M., Kaganov M.I., Tanatarov L.V. // Atomnaya energiya. - 1959. - Vol. 6. - P. 391 - 402. (Rus)
4. Vavilov V.S. Radiation effect on semiconductors. - Moskva: Fizmatgiz, 1963. - 264 p. (Rus)
5. Vavilov V.S., Kekelidze N.P., Smirnov L.S. Radiation effect on semiconductors. - Moskva: Nauka, 1988. - 190 p. (Rus)
6. Twerenbold Damian. Cryogenic particle detectors // Reports on Progress in Physics. - 1996. - Vol. 59, No. 3. - P. 349 - 426.
7. Cryogenic Particle Detection (edited by Christian Enss) // Topics in applied physics. Vol. 99. - Springer, 2005. - 507 p.
8. Giuliani A. Neutrino physics with low-temperature detectors // Journal of Low Temperature Physics. - 2012. - Vol. 167. - P. 991 - 1003.
9. Keldysh L.V., Kozlov A.N. // ZhETF. - 1968. - Vol. 54, No. 3. - P. 978 - 993. (Rus)
10. Electronic processes in organic molecular crystals.

- Transfer, capture, spin effects / Ed. E. A. Silinsh. - Riga: Zinatne, 1992. - 364 p. (Rus)
11. *Zhevandrov N.D.* Optical anisotropy and energy migration in molecular crystals. - Moskva: Nauka, 1987 - 168 p. (Rus)
12. *Schiavi A.M.M.* Study of laser produced plasmas by X-ray and proton radiography // PhD thesis, Imperial College of Science, Technology and Medicine. - London, 2003. - 182 p.
13. *Spackman M.A., Munshi P., Dittrich B.* // Chem-PhysChem. - 2007. - Vol. 8, No. 14. - P. 2051 - 2063.
14. *Rajs T., Khensel Dzh., Phillips T., Tomas G.* Electron-hole liquid in semiconductors. - Moskva: Mir, 1980. - 352 p. (Rus)

Надійшла 15.12.2014

Received 15.12.2014