Mise en évidence de l'émission résonnante dans RbI

G. Guillot, E. Mercier, A. Nouailhat

► To cite this version:

G. Guillot, E. Mercier, A. Nouailhat. Mise en évidence de l'émission résonnante dans RbI. Journal de Physique Lettres, 1977, 38 (24), pp.495-497. 10.1051/jphyslet:019770038024049500 . jpa-00231428

HAL Id: jpa-00231428

<https://hal.science/jpa-00231428>

Submitted on 1 Jan 1977

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification

Physics Abstracts

71.35 — 78.55 — 78.60

MISE EN ÉVIDENCE DE L'ÉMISSION RÉSONNANTE DANS RbI

G. GUILLOT, E. MERCIER et A. NOUAILHAT

Laboratoire de Physique de la Matière (*), Institut National des Sciences Appliquées de Lyon,
20, avenue Albert-Einstein, 69621 Villeurbanne Cedex, France

(Reçu le 26 octobre 1977, accepté le 14 novembre 1977)

Résumé. — Nous décrivons les propriétés d'une nouvelle émission de luminescence sans décalage de Stokes obtenue à basse température dans RbI sous excitation optique dans la première bande d'absorption excitonique. Cette émission est attribuée à la décroissance radiative à partir d'un état libre non relaxé de l'exciton.

Abstract. — A new luminescence without Stokes shift is reported in RbI at low temperatures under optical excitation in the first exciton absorption band. This emission is attributed to the radiative annihilation from a non-relaxed state of the exciton.

1. **Introduction.** — Contrairement à ce qui se passe dans les semiconducteurs, on admet généralement que, dans les halogénures alcalins, l'exciton s'autopiège instantanément après sa création à cause de la très forte interaction exciton-phonon [1]. Ceci explique la quantité considérable des travaux expérimentaux effectués dans ces substances sur les bandes de luminescence à large décalage de Stokes émises par l'exciton autopiégé.

Cependant, Kuusmann *et al.* [2, 3] ont mis en évidence, récemment, dans les iodures l'existence d'une luminescence intrinsèque sous irradiation X ou électronique, pratiquement sans décalage de Stokes par rapport au premier pic d'absorption excitonique. Cette bande d'émission (*edge* luminescence), beaucoup moins large et moins intense que les émissions de l'exciton autopiégé, a été attribuée à la décroissance radiative de l'exciton ($X^0 + e^*$) avant sa relaxation axiale vers la localisation du trou sur les deux ions halogènes X^- avec formation de la quasmolécule ($X_2^- + e^*$) [3].

Les électrons et les rayons X ne sont certainement pas les meilleures excitations pour étudier, dans des conditions optimales, l'*edge* luminescence dans les cristaux ioniques car, d'une part, on crée peu d'excitons libres et, d'autre part, ces radiations ionisantes provoquent la création de défauts qui font décroître très fortement le rendement de cette luminescence [3].

L'excitation ultraviolette est beaucoup mieux adaptée car elle permet une excitation sélective dans la zone du pic d'absorption excitonique.

Nous avons mis en évidence une luminescence résonnante émise dans RbI sous excitation ultraviolette dans la première bande d'absorption excitonique, et confronté nos résultats aux très récents travaux de Hayashi [4] et Nishimura [5] dans ce domaine. Nous avons également mesuré le spectre d'excitation et la dépendance en température de cette nouvelle bande d'émission.

2. **Observations expérimentales.** — Des cristaux ultra purs de RbI (provenance Salt Lake City) sont clivés et montés sous atmosphère d'hélium sec dans un cryostat à hélium. L'excitation de la luminescence est réalisée par une lampe à deutérium Original Hanau D 200. La lumière excitatrice passe au travers d'un monochromateur à réseau haute intensité Bausch et Lomb, puis est focalisée sur l'échantillon après modulation. La lumière émise par la face illuminée du cristal est focalisée sur la fente d'entrée d'un monochromateur à réseau Hilger et Watts D 330 associé à un photomultiplicateur EMI 9635 QB dont le signal de sortie est traité par une détection synchrone Brookdeal.

Les bandes passantes des monochromateurs d'excitation et d'analyse sont respectivement 20 Å et 10 Å. Les spectres obtenus ne sont pas corrigés à partir de la réponse spectrale du système d'analyse.

(*) Equipe de recherche associée au C.N.R.S.

Le spectre d'émission à 5 K (cf. Fig. 1) de RbI excité à 5,99 eV (2 070 Å) présente, en plus des émissions de l'exciton autopiégé, une bande de luminescence très étroite de forme symétrique, située à 5,718 eV (2 168 Å). Sa largeur à mi-hauteur est déterminée par la bande passante du monochromateur d'analyse. La différence en énergie de ce pic, par rapport au maximum d'absorption du premier pic excitonique (5,72 eV d'après [6]) est de 2 meV.

Le spectre d'excitation de cette nouvelle luminescence est montré sur la figure 2. Elle est émise par excitation dans la région haute énergie du premier pic d'absorption excitonique. Aucune luminescence n'est détectée dans cette zone par excitation dans la région de basse énergie de la bande excitonique ou par les transitions bande à bande.

FIG. 1. — Spectre d'émission de la luminescence résonnante dans RbI à 5 K sous excitation à 5,99 eV. La flèche indique la position du premier pic d'absorption excitonique [6].

[Emission spectrum of the resonant luminescence in RbI at 5 K under excitation at 5.99 eV. The arrow indicates the position of the first exciton absorption peak [6].]

FIG. 2. — Spectre d'excitation de la luminescence résonnante à 8 K. Les flèches pleines et en pointillés indiquent respectivement la position de la luminescence résonnante et l'énergie du gap.

[Excitation spectrum of the resonant luminescence at 8 K. Full and dotted arrows indicate the positions of the resonant luminescence and the energy of the band gap respectively.]

L'intensité de l'*edge* luminescence décroît avec la température suivant la relation ci-après (Fig. 3) :

$$\frac{I}{I_0} = \left[1 + a \exp \left(-\frac{\Delta E}{kT} \right) \right]^{-1} \quad (1)$$

où I_0 : intensité émise à $T = 0$ K,
 a : constante et $\Delta E = 17 \text{ meV} \pm 5 \text{ meV}$.

FIG. 3. — Dépendance en température de l'intensité de la luminescence résonnante.

[Temperature dependence of the intensity of the resonance luminescence.]

3. Discussion. — Ces résultats sont en bon accord avec ceux de Nishimura *et al.* [5] qui trouvent que le pic d'émission se situe à 5,724 eV alors que Kuusmann *et al.* l'observaient à 5,58 eV [3]. Ces différences sensibles peuvent s'expliquer par le fait que, suivant les conditions expérimentales, des défauts de réseau sont formés et peuvent être à l'origine de l'élargissement et du déplacement du maximum d'émission en piégeant les excitons libres.

L'ensemble des observations expérimentales vérifie les hypothèses de Toyozawa [7] et Sumi *et al.* [8] qui ont supposé l'existence d'une barrière de potentiel ΔE entre l'état métastable de l'exciton libre et l'état donnant lieu à l'émission de l'état accessible par activation thermique.

L'exciton non relaxé peut, soit se désexciter de façon radiative et donner lieu à la luminescence de résonance avec une probabilité $1/\tau_{\text{rad}}$, soit relaxer vers les états autopiégés avec une probabilité $1/\tau_{\text{rel}}$.

Le rendement de luminescence sera alors :

$$\eta_{\text{rad}} = \frac{\frac{1}{\tau_{\text{rad}}}}{\frac{1}{\tau_{\text{rad}}} + \frac{1}{\tau_{\text{rel}}}} \approx \frac{\tau_{\text{rel}}}{\tau_{\text{rad}}} \quad (2)$$

si $\frac{\tau_{\text{rad}}}{\tau_{\text{rel}}} \gg 1$.

η_{rad} est fixé par la probabilité d'autopiégeage des excitons qui, d'après (1) et (2), est constante à très basse température et, à plus haute température, fonction d'un processus thermiquement activé dû à une barrière de potentiel ΔE séparant l'état libre et l'état autopiégé de l'exciton. Dans cet état libre non relaxé, il a été montré que l'exciton peut diffuser sur de longues distances (350 Å dans RbI) et transférer son énergie soit sur des impuretés [9] soit sur des défauts [10].

Compte tenu du décalage entre l'absorption excitonique et la luminescence émise, il apparaît que l'émission de résonance est due à l'annihilation directe des excitons non relaxés.

Dans les halogénures alcalins, deux types de luminescence excitonique peuvent donc coexister : la fluorescence résonnante et la luminescence *large* avec décalage de Stokes.

L'ensemble de ces résultats mériterait une interprétation complète dans le cadre de la théorie du polariton [11, 12]. Des études de durée de vie, en fonction de l'énergie d'excitation et des défauts de réseau introduits sous irradiation ionisante dans les cristaux ultra purs, doivent être effectuées pour vérifier si cette bande peut être bien attribuée à la fluorescence résonnante du polariton et tester des modèles théoriques disponibles [13].

Bibliographie

- [1] KABLER, M. N., *Point Defects in Solids*, ed. J. H. Crawford Jr, Slifkin, L. M. (Plenum Press) vol. 1 (1972) p. 327.
- [2] KUUSMANN, I. L., LIBLIK, P. Kh., LUSHCHIK, Ch. B., *J.E.T.P. Lett.* **21** (1975) 72.
- [3] KUUSMANN, I. L., LIBLIK, P. Kh., LIID'YA, G. G., LUSHCHIK, N. E., LUSHCHIK, Ch. B., SOOVIK, T. A., *Sov. Phys. Solid State* **17** (1976) 2312.
- [4] HAYASHI, T., OHATA, T., KOSHINO, S., *J. Phys. Soc. Japan* **43** (1977) 347.
- [5] NISHIMURA, H., OHHIGASHI, C., TANAKA, Y., TOMURA, M., *J. Phys. Soc. Japan* **43** (1977) 157.
- [6] TOMIKI, T., *J. Phys. Soc. Japan* **23** (1967) 1280.
- [7] TOYOZAWA, Y., *Progr. Theor. Phys.* **26** (1961) 29.
- [8] SUMI, A., TOYOZAWA, Y., *J. Phys. Soc. Japan* **35** (1973) 137.
- [9] HATTORI, A., TOMURA, M., FUJII, O., NISHIMURA, H., *J. Phys. Soc. Japan* **41** (1976) 194.
- [10] NOUAILHAT, A., MERCIER, E., GUILLLOT, G., *J. Phys. C* **7** (1976) 492.
- [11] TOYOZAWA, Y., *Progr. Theor. Phys. Suppl.* **12** (1959) 111.
- [12] FONTANA, M. P., *Phys. Rev. Lett.* **37** (1976) 789.
- [13] SUMI, H., *J. Phys. Soc. Japan* **41** (1976) 526.