

УДК 535.37

©1994

КИНЕТИКА НЕРАВНОВЕСНЫХ НОСИТЕЛЕЙ И ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЙ В ПРИМЕСНЫХ КРИСТАЛЛАХ SrTiO_3 В УСЛОВИЯХ ТРЕХФОТОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ ИНТЕНСИВНОГО ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Э.М.Шахвердиев

Проведено детальное исследование кинетики неравновесных носителей и люминесценции в кристаллах SrTiO_3 в условиях трехфотонной ионизации валентных электронов с учетом процессов автолокализации электронных возбуждений, квадратичной и линейной рекомбинации, образования экситонов, делокализации электронных возбуждений, ионизации примесей и экситонов лазерным излучением при облучении кристаллов SrTiO_3 ультракороткими лазерными импульсами сверхвысокой интенсивности. Получены асимптотические выражения для концентрации носителей и интенсивности фотолюминесценции при различных длительностях и интенсивностях лазерного излучения. Приводится сравнение с экспериментальными результатами. В случае адекватности полученные асимптотические оценки с учетом результатов экспериментальных исследований могут быть использованы для косвенной оценки таких важных физических величин, как сечения автолокализации (делокализации) электронных возбуждений, ионизации экситонов.

1. В недавно опубликованной работе [1] сообщалось о впервые обнаруженном трехфотонном поглощении в отожженных в восстановительной среде ($T_{\text{отж}} = 1000^\circ\text{C}$) кристаллах SrTiO_3 при облучении ультракороткими импульсами ($t_p = 20$ пс) лазерного излучения ($\lambda = 1.06$ мкм). В диапазоне интенсивностей лазерного излучения $10^{10} - 10^{11}$ Вт/см² наблюдался спад пропускания образцов и при интенсивностях $I \geq 10^{11}$ Вт/см² происходило оптическое разрушение поверхности кристаллов. По мнению авторов [1], падение пропускания образцов в диапазоне интенсивностей от 10^{10} до 10^{11} Вт/см² может быть обусловлено возрастанием вероятности трехфотонных переходов между валентной зоной и зоной проводимости (условие $3\hbar\omega > E_g$, где $\hbar\omega = 1.17$ эВ — энергия фотона, E_g — ширина запрещенной зоны SrTiO_3 , легко выполняется). Это подтверждается сходным падением пропускания неокрашенных кристаллов SrTiO_3 , которое наблюдается в том же диапазоне интенсивностей (температура кристалла не указана). В работе [1] при условии наилучшего совпадения экспериментальных и расчетных кривых пропускания было определено значение коэффициента трехфотонного поглощения $\alpha_{(3)} = 2 \cdot 10^{-11}$ см³/Вт².

В работе [2] исследуется кинетическая модель трехфотонного лазерного возбуждения неравновесных носителей [1] в беспримесных кристаллах SrTiO_3 с учетом автолокализации электронов зоны проводимости [3], квадратичной рекомбинации дырок и автолокализованных электронов [3], делокализации электронов лазерным излучением. Анализировалось нестационарное поведение неравновесных носителей при различных длительностях и интенсивностях лазерного излучения. С учетом экспериментальных данных работы [1] приведено оценочное значение коэффициента трехфотонного поглощения, которое удовлетворительно согласуется с результатом [1]. Поскольку полученные в [2] асимптотические зависимости могут быть экспериментально исследованы в различных диапазонах изменений интенсивности и длительности лазерного импульса, эти аналитические оценки также с точки зрения исследования степени адекватности предложенной в [1] физической модели.

2. Исследования экситонной модели [3,4] фотолюминесценции (ФЛ) в таких кристаллах, как LiNbO_3 , KTaO_3 , SrTiO_3 , обнаружили, что эта модель (ФЛ обусловлена излучательным распадом экситона) в отличие от структурной (за ФЛ ответствен излучательный переход возбужденного кислородного октаэдра в основное состояние) и примесной (несобственная природа ФЛ) моделей (см., например, [5,6]) адекватно, с единых позиций, объясняет, в частности, экспериментальные результаты по исследованию корреляции между ФЛ и фотопроводимостью, влияния облучения и примесей на интенсивность ФЛ, характерных зависимостей интенсивности ФЛ от интенсивности лазерного излучения, особенностей поведения неравновесных носителей и ФЛ в области фазового перехода, релаксационного поведения ФЛ и т.п. Оценки, полученные на основе детального анализа экситонной кинетической модели [1] ФЛ в условиях однофотонной ионизации валентных электронов, показывают, что процессы ионизации экситонов, делокализации электронных возбуждений лазерным излучением вносят существенный вклад в кинетику носителей и ФЛ при очень высоких интенсивностях $I \geq 10^9$ Вт/см². Однако, как уже отмечалось выше, при таких интенсивностях лазерного излучения становятся весьма вероятными процессы трехфотонного поглощения [1].

С учетом вышесказанного в настоящей статье детально исследуется экситонная модель кинетики неравновесных носителей и люминесценции в кристаллах SrTiO_3 в условиях трехфотонной ионизации ионов решетки при облучении этих кристаллов ультракороткими лазерными импульсами высокой интенсивности. Получены асимптотические формулы для концентрации носителей и интенсивности ФЛ в зависимости от длительности и интенсивности лазерного излучения. Поскольку абсолютные оценки интенсивностей и соответственно коэффициентов трехфотонного поглощения обычно бывают весьма неточны для нелинейного процесса столь высокого порядка и, кроме этого, многие параметры задачи, такие как сечение рекомбинации носителей, скорость электронов и дырок, сечение локализации (делокализации) электронных возбуждений и т.п., практически для конкретного кристалла неизвестны, то получение сколь-нибудь приемлемого асимптотического решения для многопараметрических задач представляет немаловажную

ценность. (Численный счет весьма эффективен в случае известных кинетических параметров).

С учетом результатов экспериментальных исследований эти асимптотические оценки могут быть использованы для оценки таких фундаментальных величин, как коэффициент многофотонного поглощения, сечения автолокализации (делокализации) электронных возбуждений и ионизации экситонов, поскольку, варьируя длительность, интенсивность лазерного излучения, можно «выявить» вклад того или иного процесса в кинетику носителей и ФЛ, так как каждый из этих процессов имеет характерный масштаб времени.

1. Физическая модель. Основные уравнения

Исследуемая модель включает в себя процессы рождения электронов и дырок в результате трехфотонной ионизации ионов решетки, автолокализации электронов зоны проводимости (в кристаллах SrTiO_3) за характерные фотонные времена $\sim 10^{-12}$ с, образования экситонов при захвате дырок автолокализованными электронами, делокализации электронных возбуждений и ионизации экситонов лазерным излучением. Кроме этого, в исследуемой модели учтены также процессы ионизации примесей лазерным излучением, захвата носителей примесными дефектами, распада экситона. Для простоты здесь ограничимся случаем «электронных» примесей и пренебрежем кинетикой примесных центров, считая, что за время действия лазерного импульса существенного изменения концентраций примесей не происходит.

Учитывая вышесказанное, запишем систему кинетических уравнений в следующей форме:

$$\frac{dn_{ef}}{dt} = \sigma^{(3)}n_v I^3 - \frac{n_{ef}}{\tau_{s,t}} + \sigma^{s,t} I n_{e,s,t} + \sigma^i I n_i - \frac{n_{ef}}{\tau_r},$$

$$\frac{dn_p}{dt} = \sigma^{(3)}n_v I^3 - \sigma v n_{e,s,t} n_p + \sigma^{ex} I n_{ex},$$

$$\frac{dn_{e,s,t}}{dt} = \frac{n_{ef}}{\tau_{s,t}} - \sigma^{s,t} I n_{e,s,t} - \sigma v n_{e,s,t} n_p + \sigma^{ex} I n_{ex},$$

$$\frac{dn_{ex}}{dt} = \sigma v n_{e,s,t} n_p - \sigma^{ex} I n_{ex} - \frac{n_{ex}}{\tau_{ex}},$$

$$n_{ef}(t=0) = n_p(t=0) = n_{e,s,t}(t=0) = n_{ex}(t=0) = 0, \quad (1)$$

где I — интенсивность лазерного излучения; n_{ef} , n_p , $n_{e,s,t}$, n_v , n_{ex} , n_i — концентрации свободных электронов, дырок, автолокализованных электронов, валентных электронов, автолокализованных экситонов, примесей соответственно; $\sigma^{(3)}$, $\sigma^{s,t}$, σ^{ex} , σ^i , σ — сечения ионизаций валентных электронов, автолокализованных электронов, экситонов, примесей и захвата дырок автолокализованными электронами соответственно; $\tau_{s,t}$, τ_r , τ_{ex} — времена жизни автолокализации электронов, электронов относительно захвата примесными дефектами (время линейной рекомбинации электронов), экситонов соответственно; v — скорость дырок (электроны автолокализованы).

При анализе решений системы (1) форму лазерного импульса будем считать прямоугольной. Для анализа системы (1) в дальнейшем удобно перейти к уравнениям в безразмерных переменных.

За единицу времени принято время линейной рекомбинации электронов

$$t_{\text{физ}} = \tau_r t. \quad (2)$$

Введем безразмерную интенсивность

$$\xi = II_0^{-1}, \quad I_0 = (\sigma^{(3)} n_v \sigma v)^{-1/3} \tau_r^{-2/3} \quad (3)$$

и концентрацию

$$x = n n_0^{-1}, \quad n_0 = (\sigma v \tau_r)^{-1}. \quad (4)$$

Обозначим также

$$\begin{aligned} \beta &= \tau_r \tau_{s.t}^{-1}, & \alpha &= \sigma^{s.t} I_0 \tau_r, & \gamma &= \sigma^i I_0 \tau_r x_i, \\ \varepsilon &= \sigma^{ex} I_0 \tau_r, & \delta &= \tau_r \tau_{ex}^{-1}. \end{aligned} \quad (5)$$

В итоге получаем

$$\begin{aligned} \frac{dx_{ef}}{dt} &= \xi^3 - \beta x_{ef} + \alpha \xi x_{e.s.t} + \gamma \xi - x_{ef}, \\ \frac{dx_p}{dt} &= \xi^3 - x_{e.s.t} x_p + \varepsilon \xi x_{ex}, \\ \frac{dx_{e.s.t}}{dt} &= \beta x_{ef} - \alpha \xi x_{e.s.t} - x_{e.s.t} x_p + \varepsilon \xi x_{ex}, \\ \frac{dx_{ex}}{dt} &= x_{e.s.t} x_p - \varepsilon \xi x_{ex} - \delta x_{ex}. \end{aligned} \quad (6)$$

Учитывая экспериментальные данные [1] и используя разумные значения физических величин (значения многих нижеприведенных параметров точно неизвестны или же эти данные являются предметом дискуссии)

$$\sigma^{(3)} \approx 10^{-76} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^2, \quad n_v \approx 10^{19} \text{ см}^{-3}, \quad \sigma \approx 10^{-13} \text{ см}^2, \quad v \approx 10^7 \text{ см/с},$$

$$\tau_{s.t} \approx 10^{-12} \text{ с}, \quad \sigma^{s.t} \approx 10^{-17} \text{ см}^2, \quad \sigma^{ex} \approx 10^{-16} \text{ см}^2,$$

$$\sigma^i \approx 10^{-17} \text{ см}^2, \quad n_i \approx 10^{16} \text{ см}^{-3}, \quad \tau_r \approx 10^{-7} \div 10^{-10} \text{ с},$$

легко получить

$$I_0 \approx 10^{10} \text{ Вт/см}^2, \quad n_0 \approx 10^{16} \text{ см}^{-3}, \quad \alpha \approx 10, \quad \varepsilon \approx 10^2,$$

$$\gamma \approx 10^2, \quad \delta \approx 10, \quad \beta \approx 10^5.$$

(При оценках было использовано значение $\tau_r \approx 10^{-7}$ с и принят во внимание тот факт, что система кинетических уравнений записана с

использованием интенсивности лазерного излучения I , а не через плотность потока фотонов $F = I(\hbar\omega)^{-1}$.

Отметим, что по физическому смыслу при интенсивности лазерного излучения $I = I_0$ времена квадратичной рекомбинации пары автолокализованный электрон-дырка и линейной рекомбинации электронов примерно равны; n_0 — концентрация носителей при $I = I_0$; $\alpha, \varepsilon, \gamma$ — эффективности ионизации автолокализованных электронов, автолокализованных экситонов, примесей соответственно; β и δ показывают, во сколько раз время линейной рекомбинации отличается от времени автолокализации электронов и времени жизни экситона.

2. Асимптотическое исследование кинетики носителей и люминесценции

Для исследования системы кинетических уравнений (6) будем использовать метод асимптотического разложения решений сингулярно возмущенных систем по малому параметру, описанный, например, в [7] и примененный нами ранее в работах [2,4,8].

В связи с нахождением малого параметра задачи и применением вышеизванного метода необходимо отметить следующее: поскольку, согласно экспериментальным фактам работы [1], процессы трехфотонной ионизации валентных электронов становятся существенными при интенсивности лазерного излучения $I \approx 10^{10}$ Вт/см² и ввиду неопределенности многих физических величин, входящих в определение I_0 , для I_0 можно получить различные значения, лежащие в диапазоне $I_0 \gtrsim 10^{10}$ Вт/см², то малым параметром можно считать или $\xi^{-1} = I^{-1}I_0 < 1$ (если $I_0 \approx 10^{10}$ Вт/см²), или $\xi = II_0^{-1} < 1$ (если $I_0 > 10^{10}$ Вт/см²).

В этой статье мы будем считать, что малым параметром задачи является $\xi^{-1} < 1$ (случай $\xi < 1$ будет исследован отдельно). Довольно громоздкие вычисления, связанные с многократным применением асимптотического метода по $\xi^{-1} < 1$, приводят к следующим асимптотическим формулам (в нулевом приближении), справедливым во всей области изменения длительности лазерного импульса:

$$x_{ef}(t) = \xi^2(u_y - u_y^{-1}m_1 - v(0) + v_x),$$

$$x_p(t) = \xi^2 \left(\frac{pq(1 - \exp(-(p-q)\xi^2 t))}{q - p \exp(-(p-q)\xi^2 t)} + u_p - \right.$$

$$\left. - \left(\left(\frac{\varepsilon^2}{4\xi^2} + \xi^{-1} \right)^{1/2} - \frac{\varepsilon}{2\xi} \right) + u_y - \left(\frac{\varepsilon}{\delta} + \xi^{-1} \right)^{1/2} - \frac{\alpha k_1}{k_3 v(0) - k_2} + \frac{\alpha k_1}{k_3 v_x - k_2} \right),$$

$$x_{e.s.t}(t) = \xi^2 \left(\frac{pq(1 - \exp(-(p-q)\xi^2 t))}{q - p \exp(-(p-q)\xi^2 t)} + u_p - \left(\left(\frac{\varepsilon^2}{4\xi^2} + \xi^{-1} \right)^{1/2} - \frac{\varepsilon}{2\xi} \right) + \right.$$

$$\left. + u_y^{-1}m_1 - \left(\frac{\varepsilon}{\delta} + \xi^{-1} \right)^{1/2} + v(0) - v_x - \frac{\alpha k_1}{k_3 v(0) - k_2} + \frac{\alpha k_1}{k_3 v_x - k_2} + f(v_x) \right),$$

$$x_{ex}(t) = \xi^2 \left(-\frac{pq(1 - \exp(-(p-q)\xi^2 t))}{q-p \exp(-(p-q)\xi^2 t)} + \frac{\xi}{\varepsilon} u_p^2 + \left(\left(\frac{\varepsilon^2}{4\xi^2} + \xi^{-1} \right)^{1/2} - \frac{\varepsilon}{2\xi} \right) - \frac{1}{\varepsilon} \right). \quad (7)$$

Здесь u_y — решение уравнения

$$\frac{du_y}{d(\xi t)} (u_y^2 + m_1) = m_2 u_y^2 - m_3 u_y^3 + u_y m_1 (\alpha + m_3).$$

$$u_y^2(0) = \frac{\varepsilon}{\delta} + \xi^{-1}, \quad m_1 = u_y^2(0), \quad m_2 = 1 + \frac{\gamma}{\xi^2}, \quad m_3 = \frac{1 + \beta}{\xi}, \quad (8)$$

u_p — решение уравнения

$$\frac{du_p}{d(\xi^2 t)} \left(1 + \frac{2\xi}{\varepsilon} u_p \right) = \frac{1}{\xi} - \frac{\delta}{\varepsilon \xi} u_p^2 + \frac{\delta}{\varepsilon \xi^2},$$

$$u_p(0) = -\frac{\varepsilon}{2\xi} + \left(\frac{\varepsilon^2}{4\xi^2} + \xi^{-1} \right)^{1/2}, \quad (9)$$

p и q — корни квадратного уравнения

$$\frac{1}{\xi} u^2 + \frac{\varepsilon}{\xi^2} u - \frac{1}{\xi^2} = 0, \quad (10)$$

$v(0)$ удовлетворяет соотношению

$$\alpha \xi (\alpha k_1 - v(0)(k_3 v(0) - k_2)) - (k_2 - k_3 v(0))^2 = 0, \\ k_1 = m_1 \xi, \quad k_2 = m_2 \xi, \quad k_3 = m_3 \xi, \quad (11)$$

v_x удовлетворяет уравнению

$$\frac{dv_x}{dt} \left(\frac{k_3}{\alpha \xi} + \frac{\alpha k_1 k_3}{(k_3 v_x - k_2)^2} + 1 \right) = \frac{1}{\xi} \gamma - v_x, \\ v_x(0) = v(0). \quad (12)$$

Функция $f(v_x)$ определена следующим образом:

$$f(v_x) = v_x + \frac{1}{\alpha \xi} (k_3 v_x - k_2) - \frac{\alpha k_1}{k_3 v_x - k_2}. \quad (13)$$

Отметим, что уравнения (8), (9) и (12) легко интегрируются в виде $t = F(u)$, $t = F(v)$, однако эти формулы в общем случае не допускают обращения.

Легко заметить, что эти уравнения описывают переходные процессы из одного квазистационарного состояния (начальное состояние) в другое (стационарное решение соответствующего уравнения). Имея в

виду вышесказанное, из-за громоздкости формул мы не будем приводить решения этих уравнений. Время, необходимое для выхода на то или иное квазистационарное состояние, может быть легко оценено на основе интегралов уравнений.

Стационарное решение системы (6) описывается соотношениями

$$x_{ef}^{s,t} = \gamma\xi, \quad x_{ex}^{s,t} = \xi^3\delta^{-1}, \quad x_{es,t}^{s,t} = (\beta\gamma - \xi^2)\alpha^{-1},$$

$$x_p^{s,t} = \frac{\alpha(\delta\xi^3 + \varepsilon^4)}{\delta(\beta\gamma - \xi^2)}. \quad (14)$$

Согласно вышеприведенным оценкам, неравенство $\beta\gamma > \xi^2$ удовлетворяется с хорошим запасом, поэтому особенности здесь не возникают. Согласно исследуемой экситонной модели, суммарная интенсивность ФЛ определяется излучательной рекомбинацией дырок как со свободными, так и автолокализованными электронами

$$L^s = x_p x_{ef} + x_p x_{es,t} = x_p (x_{ef} + x_{es,t}). \quad (15)$$

(В этой статье мы считаем, что излучательная рекомбинация электронов и дырок является единственным каналом распада экситона).

Следует сказать, что интенсивность ФЛ можно найти также по формуле

$$L^s = \frac{1}{\tau_{ex}} \int_0^{t_p} n_{ex}(t) dt. \quad (16)$$

Однако в виду того, что в выражение для $n_{ex}(t)$ входит функция $u_p(t)$ и, более того, сама функция $n_{ex}(t)$ находится еще под интегралом, мы предпочитаем использовать формулу (15). Поэтому в дальнейшем основное внимание будет уделено исследованию зависимостей $x_{ef}(\xi, t)$, $x_p(\xi, t)$, $x_{es,t}(\xi, t)$.

Прежде всего отметим следующее: исследования временных зависимостей (7) показывают, что в целом эти зависимости состоят из ряда ступеней, которые являются результатом конкуренций тех или иных физических процессов, учитываемых в системе кинетических уравнений (6). Весьма важно, что благодаря проведенному в настоящей статье нестационарному анализу аналитически определить времена достижения того или иного квазистационарного состояния, т.е., варьируя, скажем, длительность импульса или интенсивность лазерного излучения, можно судить о роли различных процессов.

Ясно, что в начальной области длительности импульса

$$x_p(t_p) \approx \xi^3 t_p, \quad x_{ef}(t_p) \approx (\xi^3 + \gamma\xi) t_p. \quad (17)$$

Согласно исследуемой модели, при очень коротких импульсах интенсивность ФЛ определяется излучательной рекомбинацией свободных электронов и дырок

$$L^s \approx x_p x_{ef} \approx \xi^3 (\xi^3 + \gamma\xi) t_p^2 \approx \begin{cases} \xi^6 t_p^2, & \text{если } \xi^2 \gg \gamma, \\ \gamma \xi^4 t_p^2, & \text{если } \xi^2 \ll \gamma. \end{cases} \quad (18)$$

(Соотношение $\gamma < \xi^2$ можно рассматривать как условие «чистоты» кристалла). В дальнейшем за время, определяемое соотношением $\xi^2(p-q)t \sim 1$, т.е. при

$$t^{\text{вых}(1)} \approx \begin{cases} \xi^{-3/2}, & \text{если } \frac{\varepsilon^2}{4\xi} \ll 1, \\ (\varepsilon\xi)^{-1}, & \text{если } \frac{\varepsilon^2}{4\xi} \gg 1, \end{cases} \quad (19)$$

осуществляется выход на первое квазистационарное состояние

$$x_p^{(1)} \approx \xi^2 \left(-\frac{\varepsilon}{2\xi} + \left(\frac{\varepsilon^2}{4\xi^2} + \xi^{-1} \right)^{1/2} \right) \approx \begin{cases} \xi^{3/2}, & \text{если } \frac{\varepsilon^2}{4\xi} \ll 1, \\ \frac{1}{\varepsilon}, & \text{если } \frac{\varepsilon^2}{4\xi} \gg 1. \end{cases} \quad (20)$$

(Отметим, что в отличие от [4] здесь выполнение условий (20) при сверхвысоких интенсивностях представляется вполне реальным). Оценки показывают, что выход на первое квазистационарное состояние осуществляется за субнаносекундные времена, и поэтому в этом квазистационарном состоянии вклад автолокализованных электронов в интенсивность ФЛ становится существенным

$$L^{s(1)} \approx x_p^{(1)} x_{e.s.t}^{(1)} \approx (x_p^{(1)})^2 \approx \begin{cases} \xi^3, & \text{если } \frac{\varepsilon^2}{4\xi} \ll 1, \\ \frac{1}{\varepsilon^2}, & \text{если } \frac{\varepsilon^2}{4\xi} \gg 1. \end{cases} \quad (21)$$

Действительно, согласно (7), при временах $t_p \sim t^{\text{вых}(1)}$ концентрация автолокализованных электронов также определяется соотношением (20). При $t_p \sim t^{\text{вых}(1)}$

$$x_{ef}^{(1)} \approx \xi^2 u_y(0) \approx \xi^2 \left(\frac{\varepsilon}{\delta} + \xi^{-1} \right)^{1/2}. \quad (22)$$

Вклад рекомбинации свободных электронов и дырок в интенсивность ФЛ определяется выражением

$$L_{p-ef}^{s(1)} \approx x_p^{(1)} x_{ef}^{(1)} \approx \xi^4 \left(-\frac{\varepsilon}{2\xi} + \left(\frac{\varepsilon^2}{4\xi^2} + \xi^{-1} \right)^{1/2} \right) \left(\frac{\varepsilon}{\delta} + \xi^{-1} \right)^{1/2}. \quad (23)$$

Видно, что в зависимости от отношений между кинетическими коэффициентами возможны различные сверхлинейные зависимости L^s от ξ .

Дальнейший ход временных зависимостей концентраций носителей описывается следующим образом. При длительности лазерного импульса

$$t_p \sim t^{\text{вых}(2)} \approx \delta^{-1}. \quad (24)$$

Функция $x_p(t)$ определяется вторым квазистационарным состоянием

$$x_p^{(2)} \approx \xi^2 \left(\frac{\varepsilon}{\delta} + \xi^{-1} \right)^{1/2} \approx \begin{cases} \xi^{3/2}, & \text{если } \delta \gg \varepsilon\xi, \\ \xi^2 \left(\frac{\varepsilon}{\delta} \right)^{1/2}, & \text{если } \delta \ll \varepsilon\xi. \end{cases} \quad (25)$$

(Характерное время выхода на состояние (25) легко может быть оценено на основе решения уравнения (9), которое обнаруживает экспоненциальное поведение; оценки показывают, что $t^{\text{вых}(2)} \gtrsim 10$ нс).¹ При $t_p \sim t^{\text{вых}(2)}$

$$x_{e.s.t}^{(2)} \approx u_y^{-1} m_1 \approx x_p^{(2)} \approx \xi^2 \left(\frac{\varepsilon}{\delta} + \xi^{-1} \right)^{1/2}, \quad (26)$$

$$x_{ef}^{(2)} \approx u_y^{-1} m_1 \approx x_{ef}^{(1)},$$

$$L^{s(2)} \approx x_p^{(2)} x_{e.s.t}^{(2)} \approx \begin{cases} \xi^3 & \text{при } \delta \gg \varepsilon \xi, \\ \xi^4 \frac{\varepsilon}{\delta} & \text{при } \delta \ll \varepsilon \xi. \end{cases}$$

Наконец, при временах

$$t_p \sim t^{\text{вых}(3)} \approx \frac{1}{(m_2 + \alpha)\xi} = \frac{1}{\xi \left(1 + \frac{\gamma}{\xi^2} + \alpha \right)} \quad (27)$$

функции x_{ef} , $x_{e.s.t}$, x_p определяются квазистационарными состояниями $v(0)$, $\alpha k_1 / (k_3 v(0) - k_2)$. (Оценка времени $t^{\text{вых}(3)}$ произведена аналогично $t^{\text{вых}(2)}$ на основе исследования поведений решения (8); согласно оценкам, $t^{\text{вых}(3)} \gtrsim 10^{-8}$ с).²

Отметим, что благодаря действию функции v_x после достижения состояния $v(0)$ функция x_{ef} стремится к своему стационарному состоянию (14). Переход к стационарному состоянию (14) для x_p осуществляется функцией $\alpha k_1 (k_3 v_x - k_2)^{-1}$; функция $x_{e.s.t}$ после достижения состояния $v(0)$, $\alpha k_1 / (k_3 v(0) - k_2)$ в результате действия функции $f(v_x)$ выходит на стационарное состояние (14). Как показывают оценки, характерное время выхода на стационарное состояние (14) осуществляется за времена $t^{s.t} \sim \beta(\alpha\xi)^{-1}$, т.е. состояние (14) достигается за сотни микросекунд. (Оценка $t^{s.t}$ получена на основе исследования решения уравнения (12)). Исследования квазистационарных состояний при $t_p \gtrsim t^{\text{вых}(3)}$ и стационарного решения (14) показывают, что при таких временах немаловажную роль начинают играть относительно медленные процессы ионизации примесей, захвата носителей дефектами. Конкретные формы зависимостей концентрации носителей (интенсивности ФЛ) от кинетических коэффициентов при $t_p \gtrsim t^{\text{вых}(3)}$ довольно громоздки, поэтому здесь мы их не приводим. (Заметим, что $k_3 v(0) - k_2 = 0$ либо при $\xi = 0$, либо при $\alpha = 0$; в этом случае следует вернуться к исходной системе (6) и исследование системы (6) проводить с учетом этих условий).

¹ Кажущееся неизбежное разрушение кристалла легко «преодолеть подходящим выбором» τ_r (см. оценку параметров выше).

² См. сноску 1.

3. Обсуждение и заключительные замечания

В настоящей статье впервые проведено детальное исследование кинетики неравновесных носителей и люминесценции в кристаллах SrTiO_3 в условиях трехфотонной ионизации валентных электронов при облучении этих кристаллов ультракороткими импульсами сверхвысокой интенсивности с учетом процессов автолокализации электронных возбуждений, квадратичной и линейной рекомбинации, образования экситонов, ионизации примесей и экситонов, делокализации электронных возбуждений лазерным излучением. Поскольку первое сообщение о наблюдении трехфотонного поглощения лазерного излучения в кристаллах SrTiO_3 появилось совсем недавно [1] и авторы этой статьи свой вывод сделали лишь на основе исследования зависимости пропускания образцов (как окрашенных, так и номинально чистых) от интенсивности лазерного излучения, что явно недостаточно для однозначного вывода (сами авторы говорят о возможной роли трехфотонного поглощения), то проведенное исследование с точки зрения выяснения степени адекватности предложенной в [1] физической модели представляется актуальным.

Хорошо известно, что наличие в запрещенной зоне кристалла устойчивых промежуточных уровней, принадлежащих примесям, может довольно существенно (на несколько порядков) увеличить вероятность многофотонных процессов при резонансе с промежуточными состояниями. В настоящей статье роль примесных уровней заключается лишь в том, что примеси являются источником электронов и центрами захвата, и рассматривается нерезонансное взаимодействие. Для однозначного определения природы многофотонного поглощения, т.е. выяснения того, является ли переход электронов из валентной зоны в зону проводимости одноступенчатым (прямым) многофотонным переходом (через виртуальные уровни) или же такой переход соответствует многоступенчатому и (каскадным) многофотонным процессам (через реальные уровни), необходимо проведение комплексных экспериментальных, теоретических исследований электропроводности и фотопроводности кристаллов, зависимости поглощенной энергии от интенсивности лазерного излучения, люминесцентных и поляризационных характеристик излучений кристаллов при различных температурных диапазонах, длительностях и интенсивностях лазерного излучения. Различие между прямыми и каскадными процессами очень тонкое, и принципиально его можно выявить по различию ширины линий переходов и по нестандартному релаксационному поведению [9].

Проведенное в настоящей статье подробное теоретическое исследование кинетики неравновесных носителей и люминесценции при различных длительностях и интенсивностях лазерного излучения позволяет выявить диапазон изменения интенсивности, длительности импульса, где существенным становится вклад (в фотопроводность, люминесценцию) таких процессов, как автолокализация электронов, квадратичная рекомбинация, образование экситонов, ионизация примесей, экситонов и локализованных электронных возбуждений, захват носителей на дефекты.

Проведенный в предыдущем разделе детальный анализ показывает, что зависимости концентрации носителей (и, следовательно, люминес-

денции) от длительности импульса состоят из ряда ступеней, образовавшихся в результате конкуренции между вышеназванными процессами; получены также конкретные выражения для зависимости концентрации носителей (и люминесценции) от интенсивности лазерного излучения в том или ином диапазоне изменения длительности импульса. Одним из основных результатов проведенного исследования является установление существенной роли делокализации автолокализованных электронных возбуждений и ионизации экситонов (лазерным излучением) при формировании кинетики носителей и люминесценции в кристаллах SrTiO_3 при облучении этих кристаллов лазерными импульсами сверхвысокой интенсивности. В случае адекватности полученные в настоящей статье теоретические оценки с учетом результатов экспериментальных исследований могут быть использованы для косвенной оценки таких важных физических величин, как сечения автолокализации (делокализации) электронных возбуждений, ионизации экситонов.

Список литературы

- [1] Михайлов В.П., Кулешов Н.В., Коневский В.С., Кривоносов Е.В., Прокошин П.В., Юмашев К.В. // Тез. докл. XIV Междунар. конф. по когерентной и нелинейной оптике. КиНО'91, 24-27 сентября. Л., 1991. С. 36-37.
- [2] Шахвердиев Э.М. // ФТТ. 1992. Т. 34. № 7. С. 2303-2305.
- [3] Leonelli R., Vrebner J.L. // Phys. Rev. B. 1986. V. 33. P. 8649-8656.
- [4] Шахвердиев Э.М. // ФТТ. 1992. Т. 34. № 2. С. 603-610.
- [5] Ihring H., Hengst J.H.T., Klerk H. // Appl. Phys. Letts. 1974. V. 35. N 2. P. 307-311.
- [6] Sihvonen Y.T. // J. Appl. Phys. 1967. V. 38. N 11. P. 4431-4435.
- [7] Тихонов А.Н., Васильева А.Б., Свешников А.Г. Дифференциальные уравнения. М.: Наука, 1985. 230 с.
- [8] Гарнов С.В., Епифанов А.С., Климентов С.М., Панов А.А., Шахвердиев Э.М. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 5. С. 1-7.
- [9] Нелинейная спектроскопия / Под ред. Н.Бломбергена. М.: Мир, 1979. 586 с.

Бакинский государственный университет

Поступило в Редакцию
10 марта 1993 г.