

ЛАЗЕРНАЯ ФИЗИКА И ТЕХНИКА

УДК 621.373.535

ЭЛЕКТРОФИЗИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ ПРИ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ВОЗДЕЙСТВИЯХ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ПОЛУПРОВОДНИКИ

© 2011 г. Р. В. Дюкин; Г. А. Марциновский, канд. физ.-мат. наук;
Г. Д. Шандыбина, канд. физ.-мат. наук; Е. Б. Яковлев, доктор техн. наук

Санкт-Петербургский государственный университет информационных технологий, механики и оптики, Санкт-Петербург

E-mail: shandyb@lastech.ifmo.ru

Проведено численное моделирование пространственно-временного распределения концентрации неравновесных носителей заряда при действии ультракоротких импульсов лазерного излучения на полупроводники с учетом внешней эмиссии электронов. Полученные результаты сравниваются с экспериментальными условиями возбуждения и распространения волноводных мод в кремнии под действием фемтосекундных импульсов с энергией кванта порядка 0,98 эВ.

Ключевые слова: фемтосекундный лазерный импульс, внешняя эмиссия электронов, поверхностные электромагнитные волны.

Коды OCIS: 280.6680, 320.7120

Поступила в редакцию 25.06.2010

Введение

Влияние эмиссионных процессов, идущих под действием ультракоротких лазерных импульсов, на динамику электронных и тепловых процессов в веществе имеет принципиальное значение на всех стадиях лазерного воздействия и существенно образом определяет его результат.

В большинстве научных работ учитывается влияние эмиссии на развитие тепловых процессов, в частности, при образовании лазерной плазмы [1–3], при оценке температуры электронной и ионной подсистем в полупроводниковой среде [4]. Возникновение эмиссионных потоков может оказывать определяющее влияние на разрушение прозрачных сред под действием ультракоротких лазерных импульсов [5]. Исследование электронной эмиссии при воздействии фемтосекундных импульсов на серебряные и золотые островковые пленки [6] позволило выделить различные эмиссионные механизмы: многофотонную фотоэмиссию и термоэлектронную эмиссию или термически подготовленную многофотонную фотоэмиссию.

Внешняя эмиссия электронов приводит к изменению оптических свойств поверхности. Для экспериментального анализа изменения

оптических свойств поверхности при лазерном воздействии обычно используют отраженное зондирующее излучение. В то же время при интенсивном фотовозбуждении поверхности создаются благоприятные условия для резонансного возбуждения поверхностных поляритонов оптического диапазона не только в металлах, но и в полупроводниках и диэлектриках. Поэтому возбуждение поверхностных поляритонов становится тонким средством диагностики изменения состояний поверхности при ультракоротких воздействиях на вещество.

В статье обсуждается роль электрофизических явлений при фемтосекундных воздействиях. Моделируются процессы, развивающиеся в электронной подсистеме полупроводника в течение действия фемтосекундного импульса с учетом эмиссионных явлений. На основании полученного пространственно-временного распределения концентрации неравновесных носителей анализируется изменение диэлектрической проницаемости и показателя преломления в приповерхностном слое полупроводника. Результаты численного моделирования сравниваются с полученными ранее экспериментальными данными по возбуждению и распространению поляритонов ТЕ-типа (волноводных мод)

в кремнии под действием фемтосекундных импульсов с энергией кванта $h\nu = 0,98$ эВ.

Модельное представление

При фемтосекундных воздействиях, в отличие от более продолжительных, в течение импульса происходит фотовозбуждение электронной подсистемы при “холодной” кристаллической решетке. В металлах в результате поглощения квантов света свободными электронами растет их кинетическая энергия, а распределение по энергиям становится неравновесным. Эта особенность определяет поведение металлов в широкой спектральной области, где отсутствуют межзонные переходы, и лежит в основе двухтемпературной модели их нагревания ультракороткими импульсами лазерного излучения. При этом предполагается, что термализация неравновесных электронов происходит столь быстро, что сразу же можно ввести понятие электронной температуры.

Экспериментальные исследования по воздействию фемтосекундных импульсов на полупроводники и диэлектрики [7–8] показали, что концентрация генерируемых под действием лазерного излучения неравновесных носителей оказывается столь высокой, что приповерхностный слой приобретает в течение импульса свойства металла. Для описания процессов взаимодействия ультракоротких лазерных импульсов с полупроводниками можно использовать тот же подход, что и для металлов. При этом процессы фотовозбуждения можно рассматривать отдельно от процессов рекомбинации неравновесных носителей и разогрева решетки, так как характерные времена этих процессов существенно превышают длительность импульса. Важным в этом случае становится факт многофотонного поглощения, и чем шире запрещенная зона, тем большее число квантов должно участвовать в одном акте поглощения.

В статье, развивая подход, предложенный М.Н. Либенсоном [9], обращается внимание на то, что термализация неравновесных носителей фактически занимает определенное время, зависящее от частоты межэлектронных столкновений, и на начальном этапе действия импульса основное влияние на динамику процесса могут оказывать фотоэмиссионные процессы.

Для получения качественных оценок фотовозбуждения полупроводника в течение действия фемтосекундного импульса можно использовать диффузионное приближение, когда

неравновесные носители (в дальнейшем будем рассматривать поведение электронов) описываются интегральной концентрацией $N(z, t)$, которая изменяется во времени и пространстве (ось z направлена в глубь материала) за счет поглощения квантов света, диффузии, постепенной термализации в результате межэлектронных столкновений и внешней эмиссии

$$\begin{aligned} \frac{\partial N}{\partial t} - D \frac{\partial^2 N}{\partial z^2} = \\ = \alpha J(t, z) - \frac{N}{\langle \tau_{ee} \rangle} - \frac{\beta N(z, t)}{l_0} \exp\left(-\frac{z}{l_0}\right), \end{aligned} \quad (1)$$

где D – коэффициент диффузии электронов в твердом теле, $\langle \tau_{ee} \rangle$ – среднее по энергии время межэлектронных столкновений.

В коэффициенте поглощения α по аналогии с работой [10] учитывается поглощение на свободных электронах и многофотонное межзонное поглощение

$$\alpha = \alpha_e(N) + \sigma_k J^{k-1}, \quad (2)$$

где σ_k – сечение поглощения k -фотонов, наименьшее значение k удовлетворяет соотношению $kh\nu \geq E_g$, α_e – коэффициент поглощения на свободных носителях. В приближении комплексной диэлектрической проницаемости вещества $\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon''$ согласно электродинамической модели Друде

$$\alpha_e = \sqrt{\frac{-\varepsilon' + \sqrt{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2}}{2}} \omega/c,$$

где действительная часть диэлектрической проницаемости $\varepsilon' = \varepsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2}$ и мнимая часть диэлектрической проницаемости $\varepsilon'' = \frac{\omega_p^2 \gamma}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)}$ определяются плазменной частотой

$$\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi N e^2}{m_e}}$$

и частотой столкновений электронов γ . $J(z, t)$ – плотность поглощенных в единицу времени квантов света

$$\frac{\partial J}{\partial z} = -\alpha J, \quad J(0, t) = A J_0(t), \quad (3)$$

где $A J_0(t)$ – число поглощенных на поверхности квантов света, $J_0(t)$ – временная зависимость плотности падающих квантов света, $J_0 = q_0/(h\nu)$.

При расчетах используется близкое к реальному куполообразное временное распределение

плотности мощности потока лазерного излучения

$$q_0(t) = q_m t \exp(-st), \quad (4)$$

где s – коэффициент, определяющий форму фронтов импульса, q_m – максимальное значение плотности мощности, которое определяется

из условия $q_m \int_0^{\infty} t \exp(-st) dt = Q_0$ (рис. 1).

Основное внимание в рассматриваемой модели уделено влиянию процессов внешней эмиссии на пространственно-временное распределение концентрации неравновесных электронов. Эмиссия осуществляется из некоего слоя l_0 , определяемого длиной свободного пробега электронов, β – коэффициент эмиссии.

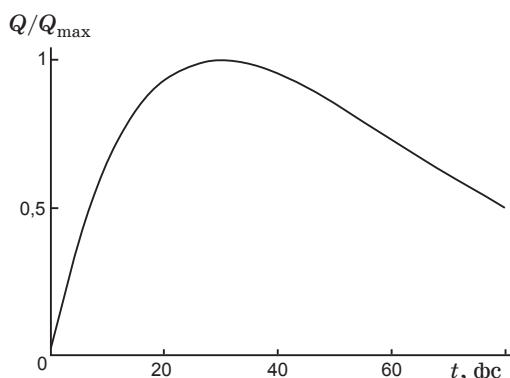


Рис. 1. Временная форма импульса, используемая в дальнейших расчетах.

При постановке задачи сам механизм эмиссии обезличивается. Подобное модельное представление, с одной стороны, позволяет упростить вычисления, а с другой стороны, анализ полученного распределения, в свою очередь, может позволить выявить определяющие механизмы эмиссии электронов при ультракоротких воздействиях.

Анализ динамики фотовозбуждения полупроводника

В работе рассмотрены два типа процесса фотовозбуждения с учетом внешней эмиссии: однофотонное поглощение ($h\nu \geq E_g$) с коэффициентом поглощения $\alpha = 10^5 \text{ см}^{-1}$, равносильное условиям взаимодействия лазерного излучения с металлами, и двухфотонное поглощение с поглощением на свободных электронах ($h\nu < E_g$). В первом случае – для прямоугольной формы импульса, а во втором – для куполообразной формы лазерного импульса как наиболее приближенной к реальной.

На рис. 2 представлено изменение концентрации неравновесных электронов в глубину в различные моменты действия лазерного импульса. Исходные данные, используемые при расчете: $D = 80 \text{ см}^2/\text{с}$, $\langle \tau_{ee} \rangle = 2 \times 10^{-14} \text{ с}$, $\beta = 2 \times 10^8 \text{ см/с}$, $\tau = 80 \text{ фс}$, $l_0 = 10^{-6} \text{ см}$, $Q_0 = 2 \text{ Дж/см}^2$. Динамические картины процесса фотовозбуждения для обоих случаев оказались подобны. На некотором расстоянии от поверхности на-

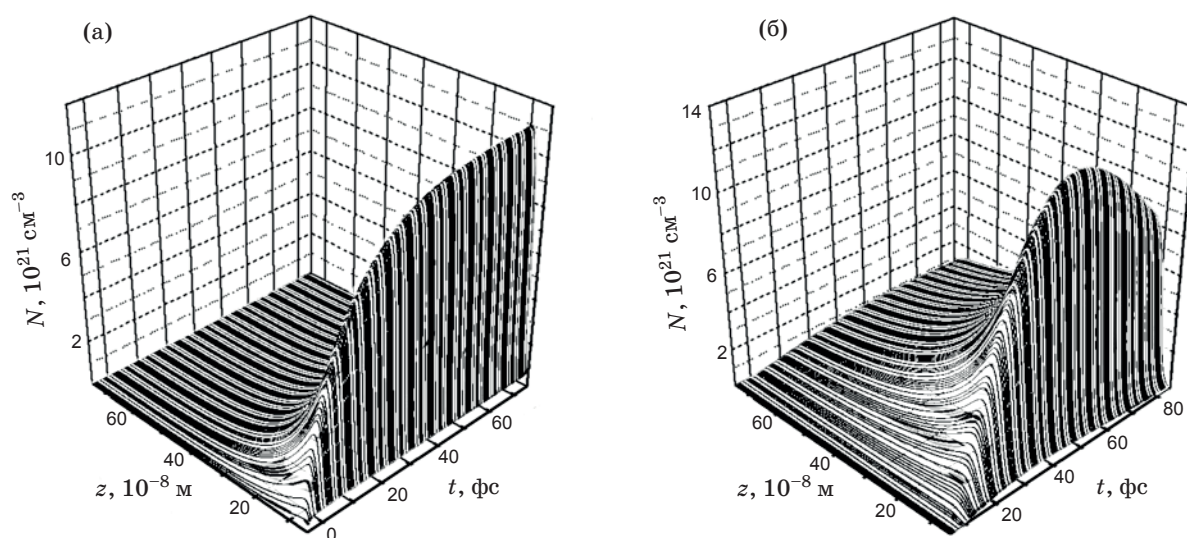


Рис. 2. Динамика фотовозбуждения полупроводника при однофотонном поглощении для прямоугольной формы импульса (а) и при двухфотонном поглощении с поглощением на свободных носителях для куполообразной формы импульса (б).

блюдается максимум концентрации неравновесных электронов. По мере действия импульса максимум концентрации смещается в глубь материала, а его значение непрерывно растет и к середине импульса достигает стационарного значения. Существенная разница проявляется в значениях максимальной концентрации электронов: около $1,5 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$ в случае однофотонного поглощения (рис. 2а) и порядка $8 \times 10^{21} \text{ см}^{-3}$ в случае двухфотонного поглощения с поглощением на свободных носителях (рис. 2б).

Общая картина распределения концентрации неравновесных носителей сохраняется и при замене прямоугольной формы импульса на куполообразную.

Результаты детального анализа второй модели фотовозбуждения представлены на рис. 3. Изменение концентрации электронов по глубине в зависимости от значения коэффициента эмиссии (рис. 3а) показало, что при отсутствии эмиссии концентрация максимальна на поверхности и монотонно убывает при удалении вглубь. Учет внешней эмиссии приводит к “заглублению” максимального значения концентрации, и чем больше коэффициент эмиссии, тем “глубже” максимум и меньше его значение (см. рис. 3а).

На рис. 3б показано перемещение глубины залегания максимума концентрации электро-

нов в течение лазерного импульса для различных значений длины свободного пробега электрона. Видно, что максимум концентрации заглубляется по мере увеличения длины свободного пробега электрона. При этом, подобно изменению зависимости концентрации электронов от коэффициента эмиссии, и в этом случае уменьшается максимальное значение концентрации с ростом длины свободного пробега.

Иной вид имеет распределение концентрации неравновесных электронов в глубину для различных значений времени межэлектронных столкновений. При увеличении времени межэлектронных столкновений глубина залегания максимума концентрации электронов так же возрастает, как и на предыдущих графиках, однако при этом максимальное значение концентрации электронов возрастает (рис. 3в). Ниже будет показано, что этот вывод наиболее важен для понимания механизма эмиссии электронов.

Сравнение с экспериментальными результатами

В статье используются результаты экспериментальных исследований, приведенные в работах [11–13]. Пластины монокристаллического кремния облучались фемтосекундны-

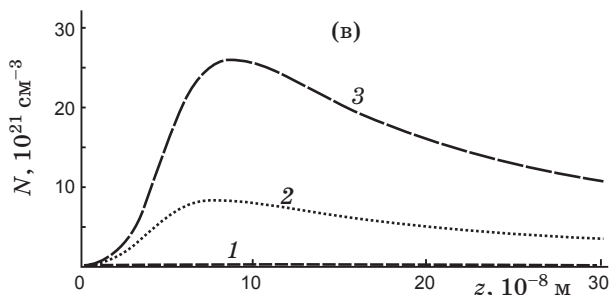
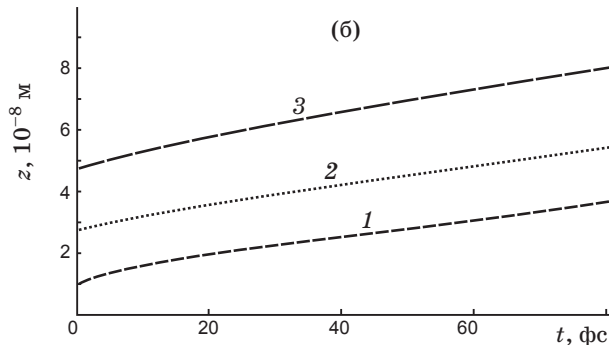
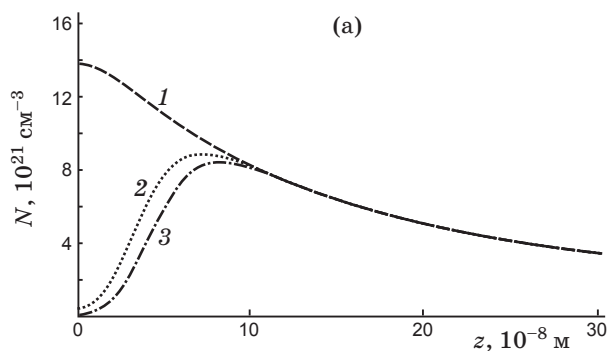


Рис. 3. Результаты расчета по модели двухфотонного поглощения с поглощением на свободных носителях и внешней эмиссией. а – распределение концентрации электронов по глубине для коэффициентов эмиссии 0 (1), $0,8 \times 10^8 \text{ см/с}$ (2), $2 \times 10^8 \text{ см/с}$ (3), б – динамика глубины залегания максимума концентрации электронов в течение лазерного импульса для значений длин свободного пробега электрона 10^{-8} см (1), 10^{-7} см (2), 10^{-6} см (3), в – распределение концентрации электронов в глубину для различных значений времени межэлектронных столкновений 10^{-15} с (1), $2 \times 10^{-14} \text{ с}$ (2), 10^{-13} с (3).

ми импульсами ($\tau = 80$ фс, $\lambda = 1,25$ мкм). При плотности энергии линейно поляризованного излучения $Q_0 \approx 2$ Дж/см². Впервые на кремнии наблюдалось образование поверхностных периодических структур, ориентированных параллельно вектору поляризации лазерного луча. Формирование структур с ориентацией, параллельной вектору поляризации, связано с возбуждением поверхностных волноводных мод (ТЕ-поляритонов). Для возбуждения подобной волноводной моды на поверхности полупроводника во время действия фемтосекундного импульса необходимо создание динамической оптически слоистой структуры, в которой показатель преломления волноводного слоя (n_2) превышает бы показатели преломления граничащих слоев (n_1, n_3): $n_2 > n_1, n_2 > n_3$.

Кроме того, необходимо наличие на каждой данной частоте определенной минимальной толщины волноводного слоя. Если лазерное излучение воздействует на среду с показателем преломления n_3 и вблизи поверхности формируется слой толщиной h с показателем преломления n_2 таким, что $n_2 > n_3 > n_1$, то [14]

$$h_{\min} \approx \frac{\lambda}{2\pi\sqrt{n_2^2 - n_3^2}} \arccos \sqrt{\frac{n_2^2 - n_3^2}{n_2^2 - n_1^2}}. \quad (5)$$

В частности, для кремния на длине волны 1,25 мкм минимальная толщина волноводного слоя согласно выражению (5) составляет $h_{\min} \approx 0,07$ мкм.

Экспериментально наблюдаемые периодические структуры, ориентированные параллельно вектору поляризации лазерного луча, подтвердили факт генерации волноводных мод на поверхности кремния при действии фемтосекундных лазерных импульсов.

Модель двухфотонного поглощения с поглощением на свободных носителях, с учетом внешней эмиссии электронов, рассчитанная для куполообразной формы импульса, позволила количественно оценить пространственно-временное распределение концентрации неравновесных электронов, образовавшихся в течение действия фемтосекундного импульса на кремний на длине волны 1,25 мкм. Используя формулу Друде, можно проследить за изменением диэлектрической проницаемости в приповерхностной области полупроводника. Оказалось, что вблизи поверхности формируется динамическая оптически слоистая структура, в которой непосредственно на поверхности величина диэлектрической проницаемости может

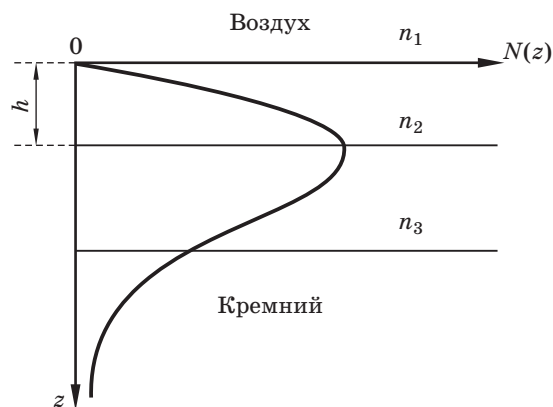


Рис. 4. Распределение концентрации неравновесных носителей заряда в полупроводнике в конце фемтосекундного лазерного импульса $N(z) = n(z, \tau)$ и соответствующая ему лазеронаведенная слоистая структура, где n_1, n_2, n_3 – эффективные показатели преломления слоев по мере их чередования вдоль координаты z .

оставаться положительной, а ниже образуется металлизированный слой (рис. 4). При этом степень металлизации может оказаться недостаточной для изменения знака диэлектрической проницаемости. Создаются условия для возбуждения поверхностной волноводной моды.

Предполагая, что толщина волноводного слоя соответствует глубине залегания максимума концентрации электронов, можно согласно численной модели оценить глубину залегания максимума. Для типичных значений $\beta \approx (1-2) \times 10^8$ см/с, $l_0 \approx 5 \times 10^{-7}$ см и $\langle \tau_{ee} \rangle \approx (5-8) \times 10^{-14}$ с получаем $z_{\max} \approx (0,06-0,08)$ мкм, что соответствует минимальной толщине диэлектрического слоя, необходимой для распространения волноводной моды.

В рассматриваемой модели учет эмиссионных явлений осуществляется посредством введения коэффициента эмиссии без определения конкретного механизма эмиссии. В то же время анализ динамики глубины залегания максимума концентрации электронов в зависимости от времени межэлектронных столкновений (см. рис. 3в), выполненный с позиций соответствия значения глубины залегания максимума значению толщины волноводного слоя $z_{\max} \geq h_{\min}$, позволяет обсудить основные механизмы, определяющие эмиссию при ультракоротких воздействиях.

Если время межэлектронных столкновений много меньше длительности импульса ($\langle \tau_{ee} \rangle \approx 10^{-15}$ с), то явление термализации сглаживает максимум в распределении concentra-

ции и слоистая структура не образуется. Если время межэлектронных столкновений соизмеримо с длительностью импульса $\langle\tau_{ee}\rangle$ порядка 10^{-14} – 10^{-13} с, то в распределении электронов появляется максимум. При этом его значение и глубина залегания увеличиваются с ростом $\langle\tau_{ee}\rangle$. Условия, необходимые для возникновения и распространения волноводной моды, реализуются при $\langle\tau_{ee}\rangle \sim 10^{-13}$ с. Ввиду того, что время межэлектронных столкновений обратно пропорционально температуре электронного газа ($\langle\tau_{ee}\rangle \sim (1/T_e)^2$) и при увеличении его значения снижается вклад термоэмиссии неравновесных электронов, можно предположить, что в режиме образования динамической структуры диэлектрических слоев в приповерхностной области кремния наряду с термоэмиссией определенную роль должна играть и многофотонная фотоэмиссия. Для более точного анализа необходимы дальнейшие исследования с детализацией в численной модели механизма внешней эмиссии электронов.

Заключение

Проведенный в работе численный анализ процесса двухфотонного фотовозбуждения полупроводника с учетом внешней эмиссии электронов выявил динамическую картину формирования оптически слоистой структуры, в которой может возбуждаться и распространяться волноводная мода ТЕ-типа, что подтверждается наблюдением периодических структур, ориентированных параллельно вектору поляризации, при действии фемтосекундных импульсов с энергией кванта порядка 0,98 эВ на кремний.

Рассмотрение динамики процесса фотовозбуждения полупроводника в зависимости от определенного времени термализации неравновесных электронов позволило предположить наряду с термоэмиссией влияние многофотонной фотоэмиссии на начальной стадии действия фемтосекундного импульса.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ 09-02-00932, 10-02-00208а и государственного контракта № П1134.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Chen Z.L., Zhang J., Liang T.J., Teng H., Dong Q.L., Li Y.T., Zhang J.J., Sheng Z.M., Zhao L.Z., Tang X.W.* Z-dependence of hot electron generation in femtosecond laser interaction with solid targets // *J. Phys. B: At., Mol., Opt., Phys.* 2004. V. 37. P. 539–546.
2. *Chen Hui, Wilks S.C., Krueer W.L., Patel P.K., Shepherd R.* Hot electron energy distributions from ultraintense laser solid interactions // *Physical of Plasmas*. 2009. V. 16. P. 020705(1–4).
3. *Kemp A.J., Sentoku Y., Tabak M.* Hot-electron energy coupling in ultraintense laser-matter interaction // *Physical Review E*. 2009. V. 79. P. 066406(1–9).
4. *Лобзенко П.В., Евтушенко Н.А., Новиков В.А., Иришин П.Г.* Влияние термоэлектронной эмиссии на поглощение ультракоротких лазерных импульсов в полупроводниках // *ЖТФ*. 2002. Т. 72. В. 1. С. 72–75.
5. *Gruzdev V.E., Komolov V.L., Przhibelskii S.G., Smirnov D.S.* Destruction of the nano-size solid particles under femtosecond laser pulse action // *Proc. SPIE*. 2007. V. 6596. P. 65960P(1–8).
6. *Gloskovskii A., Valdaitsev D.A., Cinchitti M., Nepijko S.A., Lange J., Aeschlimann M., Bauer M., Klimenkov M., Viduta L.V., Tomchuk P.M., Schönheise G.* Electron emission from films of Ag and Au nanoparticles excited by a femtosecond pump-probe laser // *Physical Review B*. 2008. V. 77. P. 195427(1–11).
7. *Carey J.E., Crouch C.H., Mazur E.* For New Optoelectronics Applications // *Optics&Photonics News*. 2003. V. 14. P. 32–36.
8. *Shimosuma Y., Kazansky P.G., Qin J.R., Hirao K.* Self-organized nanogratings in glass irradiated by ultrashort light pulses // *Phys. Rev. Lett.* 2003. V. 91. P. 247405.
9. *Либенсон М.Н.* Неравновесный нагрев и остывание металла при воздействии сверхкороткого лазерного импульса // *Изв. РАН, сер. физ.* 2001. Т. 65. В. 4. С. 515–519.
10. *Zoubir A., Richardson M., Rivero C., Schulte A., Lopez C., Richardso K.* Direct femtosecond laser writing of waveguides in As_2S_3 thin films // *Opt. Lett.* 2004. V. 29. P. 748–750.
11. *Zabotnov S.V., Ostapenko I.A., Golovan L.A., Timoshenko V.Yu., Kashkarov P.K., Shandybina G.D.* Third optical harmonic generation at silicon surfaces structured by femtosecond laser pulses // *Proc. SPIE*. 2006. V. 6161, article number 61610J.
12. *Ostapenko I.A., Zabotnov S.V., Shandybina G.D., Golovan L.A., Chervyakov A.V., Ryabchikov Yu.V., Yakovlev V.V., Timoshenko V.Yu., Kashkarov P.K.* Micro- and nanostructuring of crystalline silicon surface under femtosecond laser pulses // *Bulletin of RAS: Physics*. 2006. V. 70. P. 1503–1506.
13. *Martsinovskiy G.A., Shandybina G.D., Smirnov D.S., Zabotnov S.V., Golovan L.A., Timoshenko V.Yu., Kashkarov P.K.* Surface electromagnetic waves excitation at silicon surfaces under femtosecond laser pulses action // *Proc. SPIE*. 2008. V. 6985. P. 698502.
14. *Либенсон М.Н.* Лазерно-индуцированные оптические и термические процессы в конденсированных средах и их взаимное влияние. СПб.: Наука, 2007. 423 с.