

УДК 621.373.535

ИЗМЕНЕНИЕ ПОГЛОЩАТЕЛЬНОЙ СПОСОБНОСТИ КРЕМНИЯ ПРИ ФЕМТОСЕКУНДНОМ ЛАЗЕРНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ

И.В. Гук, Г.Д. Шандыбина, Е.Б. Яковлев

Представлены результаты теоретического моделирования совместного влияния нелинейностей поглощательной способности и коэффициента поглощения на пространственно-временное распределение электронно-дырочной плазмы и на динамику удельного поглощенного потока в кремнии в течение действия фемтосекундного лазерного импульса. Показано, что основной вклад в изменение удельного поглощенного потока вносит увеличение поглощения горячим электронным газом. Полученные результаты сопоставлены с известными представлениями о поляритонном механизме, которые используются для интерпретации фемтосекундного лазерного микроstructuring кремния. Показана необходимость учета динамики поглощательной способности при оценках режимов ультракороткой лазерной обработки полупроводников.

Ключевые слова: поглощательная способность, скин-эффект, электронно-дырочная плазма, фемтосекундное микроstructuring поверхности.

Введение

В последнее время не ослабевает практический интерес к явлениям, протекающим на поверхности полупроводников под действием ультракоротких импульсов. В частности, модификация оптических, электрических и структурных свойств поверхности кремния может быть использована при разработке светоизлучающих устройств, в том числе лазеров, для получения фотонных структур, эффективных элементов солнечных батарей, лазерной спектроскопии [1–4] и т.д.

Фундаментальные исследования особенностей взаимодействия ультракоротких лазерных импульсов с различными средами показали, что во время фемтосекундного лазерного импульса существенно изменяются оптические свойства твердого тела без изменения химического состава и морфологии поверхности. Все эти изменения происходят при нагревании решетки, которое начинается после окончания импульса, и становятся заметными после воздействия большого количества импульсов лазерного излучения. Трудности экспериментального исследования динамики процессов, протекающих в течение воздействующего ультракороткого импульса, способствовали усилению роли математического моделирования при их исследовании. В большинстве моделей, описывающих процесс интенсивного фотовозбуждения и нагрева полупроводников и диэлектриков, основное внимание уделяется изменению в процессе облучения дифференциальной оптической характеристики – коэффициента поглощения, а изменение интегральной оптической характеристики – поглощательной способности (ПС) – обычно не учитывается [5]. Возникает необходимость детального анализа механизмов и динамики изменения ПС для определения вклада этих изменений в общую картину процессов фемтосекундного воздействия лазерного излучения на полупроводники.

В работе исследуется совместное влияние нелинейностей ПС и коэффициента поглощения на процесс фемтосекундного двухфотонного возбуждения кремния с учетом внешних фото-, термоэффектов для уточнения пространственно-временного распределения электронно-дырочной плазмы и удельной плотности поглощенного потока. Численное моделирование проводится для пластин монокристаллического кремния толщиной 300 мкм, облучаемых импульсами длительностью 80 фс, генерируемых хромфорстеритовой лазерной системой ($\lambda = 1,25$ мкм) при плотности энергии линейно поляризованного излучения $0,5\text{--}2$ Дж/см².

Известно, что результат фемтосекундного структурирования поверхности кремния зависит от характера распределения оптических свойств полупроводника по глубине [6]. Это позволяет судить о процессах, развивающихся в фотовозбужденном полупроводнике, по типу сформировавшихся в результате лазерного воздействия поверхностных структур. Полученные результаты анализируются в соответствии с экспериментальными данными «поляритонного» фемтосекундного микроstructuring поверхности кремния [7].

Приближение слабоаномального высокочастотного скин-эффекта

Теория скин-эффекта успешно описывает ПС металлов. Согласно ее выводам, на величину ПС металлов влияет степень локальности отклика электронов проводимости в поле электромагнитной волны, частотная зависимость A_ω , зависимость от температуры, обусловленная увеличением частоты электрон-фононных столкновений $A_T \sim T$, и рассеяние электронов на поверхности A_s [8]:

$$A = A_\omega + A_T + A_s. \quad (1)$$

При переходе в область воздействия ультракоротких лазерных импульсов изменяется сам механизм ПС: времена электрон-фононных столкновений становятся больше длительности импульса, и на ПС начинают влиять рост температуры электронного газа, а поверхностное поглощение реализуется в условиях сильных эмиссионных потоков электронов с поверхности. Используя выражения для плазменной частоты электронов (ω_p), частоты электрон-электронных столкновений, скорости (v_F) и энергии Ферми (ϵ_F)

$$\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi n q_e^2}{m_e}}, \quad \gamma_e = \frac{9\omega_p^4}{64\pi^2 n v_F^3} \left[\left(\frac{\hbar\omega}{2\pi\varepsilon_F} \right)^2 + \left(\frac{k_B T_e}{\varepsilon_F} \right)^2 \right], \quad v_F^2 = 2\varepsilon_F / m_e, \quad \varepsilon_F = \frac{\hbar^2}{2m_e} (3\pi^2 n)^{2/3},$$

где m_e – эффективная масса, примерно равная массе свободного электрона; q_e – заряд электрона; γ_e – частота столкновений электронов, определяемая частотой электрон-электронных столкновений; $\omega = 1,5 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1}$ – частота лазерного излучения; k_B – постоянная Больцмана; n – концентрация электронов, в приближении слабоаномального высокочастотного скин-эффекта можно получить следующее выражение для ПС

$$A = b \left(\frac{\hbar\omega}{2\pi} \right)^2 + b (k_B T_e)^2 + p \frac{3v_F}{4c_0},$$

где $b = \frac{q_e^3 m_e^{7/2}}{\hbar^7 \pi^{19/6} 3^{1/3} n^{11/6}}$. (2)

В выражении (2) в соответствии с выражением (1) первые два слагаемых определяют объемное поглощение (частотную и температурную компоненты ПС), а третье слагаемое характеризует дополнительное поглощение, обусловленное диффузным отражением электронов от поверхности в глубину материала: p – феноменологический параметр, $0 < p < 1$; c_0 – скорость света.

В полупроводниках в результате многочисленных предыдущих исследований сверхбыстрой электронной динамики установлено образование плотной (более 10^{21} см^{-3}) электронно-дырочной плазмы, поэтому для качественного анализа механизма и динамики ПС кремния можно применить классическую теорию скин-эффекта.

Результаты теоретического моделирования

Для численных расчетов авторами используется модель двухфотонного фотовозбуждения кремния, в которой уравнения теплопроводности двухтемпературной модели дополнены уравнением концентрации неравновесных носителей $n(z, t)$, граничными условиями для потоков двухфотонной фотоэмиссии и термоэмиссии и выражением дифференциального закона Бугера для плотности поглощенного потока фотонов $J(z, t)$ с куполообразной формой временного распределения интенсивности лазерного излучения (ось z направлена в глубину полупроводника) [9]. В процессе фотовозбуждения с ростом концентрации электронно-дырочной плазмы изменяется коэффициент поглощения $\alpha(z, t)$, представляющий собой сумму коэффициента двухфотонного поглощения внутреннего фотоэффекта, коэффициента двухфотонного поглощения внешнего фотоэффекта и коэффициента поглощения на свободных электронах.

В первом приближении предполагается, что ПС полупроводника A является величиной постоянной. Согласно формулам Френеля, для $\lambda = 1,25 \text{ мкм}$ при комнатной температуре и толщине пластины кремния 300 мкм $A = 0,2$. Численная модель позволяет проследить динамику электронно-дырочной плазмы при куполообразной форме лазерного импульса и определить распределение концентрации возбужденных носителей в кремнии в глубину. Уже в первые фемтосекунды лазерного импульса происходит металлизация полупроводника; максимум концентрации возбужденных носителей ввиду эмиссионных явлений на поверхности заглубляется – в приповерхностном слое образуется оптически неоднородная структура.

Вводя в дифференциальный закон Бугера ПС, зависящую от концентрации неравновесных носителей согласно (2) и интегрируя результат по z , можно проследить вклад каждого из слагаемых в ПС. Результаты численного расчета представлены на рис. 1, где на фоне профиля лазерного импульса показана динамика каждого из компонент ПС. Видно, что поверхностная компонента дает слабый вклад в общую ПС, но может влиять на поглощение в начале импульса, частотная компонента также изменяется слабо, и только температурная компонента ПС стремительно возрастает. Действительно, по мере металлизации кремния растут плазменная частота, частота электрон-электронных столкновений и скорость Ферми электронов, что приводит к некоторому уменьшению частотной компоненты и росту поверхностной составляющей ПС. Интенсивный рост температурной компоненты ПС обусловлен ее квадратичной зависимостью от температуры электронного газа, которая в течение лазерного импульса может достигать значений, превышающих 10^4 К .

Проведенный качественный анализ показал, что в фотовозбужденном полупроводнике ПС может сильно изменяться благодаря температурной составляющей.

С физической точки зрения определяющей характеристикой фемтосекундного нагрева полупроводника является удельный поглощенный поток $\alpha(z, t)J(z, t)$. На рис. 2 представлена динамика удельного поглощенного потока фотонов, проинтегрированного по глубине относительно падающего потока,

$$Q(t) = \frac{\int_0^\infty \alpha(z, t) J(z, t) dz}{J_0(t)}.$$

Рост Q в начале импульса обусловлен ростом коэффициента поглощения α и соответственно уменьшением объема, в котором поглощается поток. Далее значение α стабилизируется и при постоянной ПС Q не изменяется. Учет изменяющейся ПС приводит к стремительному росту удельного поглощенного потока во второй половине импульса.

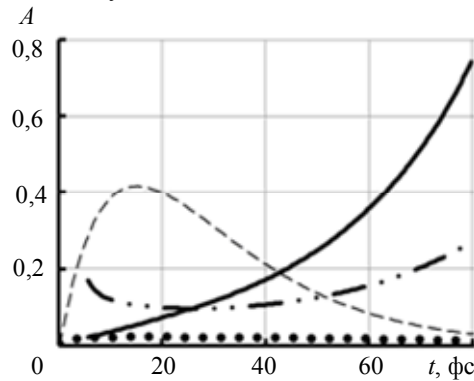


Рис. 1. Изменение поверхностной (точечная линия), частотной (штрих-пунктирная линия), температурной (сплошная линия) компонент ПС кремния во время действия лазерного импульса. Пунктирной линией показана временная форма лазерного импульса; плотность энергии 1 Дж/см^2

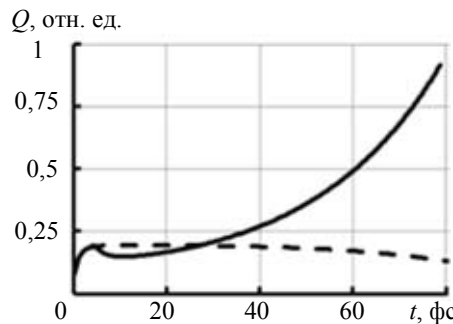


Рис. 2. Динамика удельного поглощенного потока фотонов (в относительных единицах) при постоянной ПС $A = 0,2$ (пунктирная линия) и при изменяющейся ПС (сплошная линия)

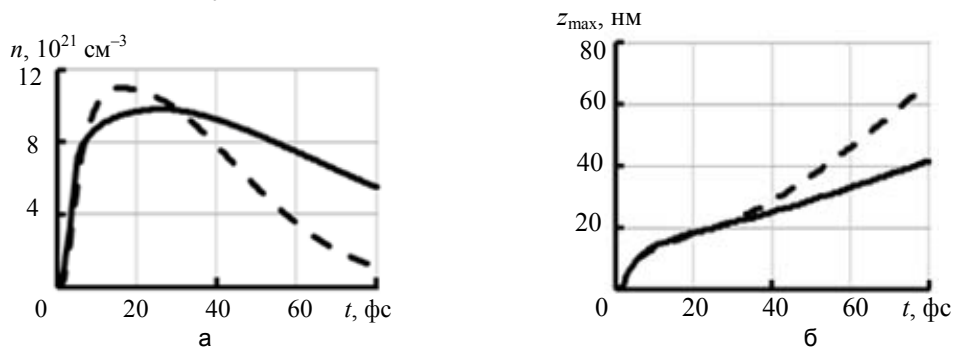


Рис. 3. Динамика концентрации носителей в фотовозбужденном кремнии (в максимуме по глубине) (а) и динамика движения координаты максимума z_{max} концентрации (б) при изменяющейся ПС (сплошная линия), пунктирная линия для $A = 0,2$

Учет зависимости ПС от температуры электронного газа существенно влияет на динамику распределения концентрации электронно-дырочной плазмы. На рис. 3, а, видно, что концентрация неравновесных носителей в течение всего лазерного импульса (более $5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$) превышает значение, при котором знак диэлектрической проницаемости в кремнии становится отрицательным, и полупроводник остается в металлизированном состоянии практически весь импульс. В глубине координата максимума концентрации неравновесных носителей с учетом изменяющейся ПС сдвигается ближе к поверхности (рис. 3, б).

Сравнение с экспериментом по фемтосекундному микроструктурированию кремния

Рассмотрим полученные результаты в соответствии с экспериментальными данными «поляритонного» фемтосекундного микроструктурирования поверхности кремния [7]. При облучении полированных пластин монокристаллического кремния лазерными импульсами длительностью 80 фс ($\lambda = 1,25 \text{ мкм}$) при плотности энергии линейно поляризованного излучения $0,5\text{--}1 \text{ Дж/см}^2$ наблюдалось формирование поверхностных периодических структур, ориентированных перпендикулярно вектору поляризации ла-

зерного излучения и связанных с возбуждением и интерференцией поверхностных поляритонов с падающей электромагнитной волной. Известно, что возбуждение плазмон-поляритонов возможно, если действительная часть диэлектрической проницаемости активной среды отрицательна, что характерно для металлов. При воздействии фемтосекундного излучения переход в металлоподобное состояние поверхности кремния обусловлен интенсивным фотовозбуждением. Высокая концентрация неравновесных носителей может изменить знак диэлектрической проницаемости, создавая условия для возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов (ППП).

Согласно результатам расчета по численной модели, учитывающей зависимость ПС полупроводника от температуры электронного газа, уровень высокой концентрации электронно-дырочной плазмы, обеспечивающий металлизацию полупроводника вблизи поверхности, поддерживается в течение всего импульса, а максимум значения концентрации неравновесных носителей приближается к поверхности. Такое распределение обеспечивает условия для возбуждения ППП, лучшие по сравнению с численными результатами, полученными при расчете с постоянной ПС.

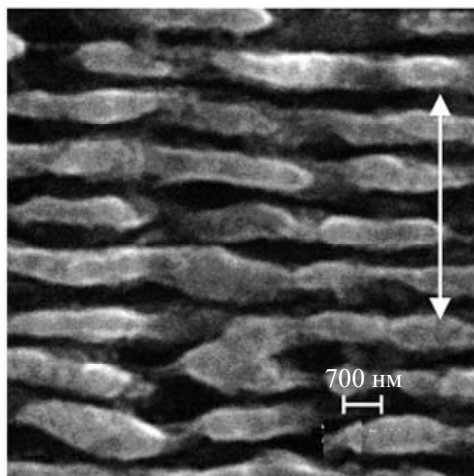


Рис. 4. Электронное изображение поверхности кремния, облученного лазерными фемтосекундными импульсами. Стрелкой показано направление вектора поляризации лазерного излучения

Фемтосекундное микроstructuring кремния, имеющее «поляритонную» природу, наблюдают многие исследователи (см., например, [10–11]). На рис. 4 показано типичное электронное изображение поверхности кремния после фемтосекундного лазерного облучения 1200 импульсами ($\lambda = 1,25$ мкм, $\tau = 80$ фс). Ясно видны микроstructures, они ориентированы перпендикулярно вектору поляризации излучения. Период структур – около 1,2 мкм (сравним с длиной волны лазера). Ориентация структур следует за вектором поляризации, и их вращение не зависит от ориентации кристаллографических осей образца. Формирование рельефа зависит от времени экспозиции. Глубина рельефа увеличивается с числом лазерных импульсов. В облученной области обнаружено присутствие окислов кремния. Подобные структуры типичны для поляритонного механизма микроstructuring.

Также следует обратить внимание на результат, имеющий большое значение для ультракороткой лазерной обработки полупроводников: удельный поглощенный поток растет по мере действия лазерного импульса не только за счет уменьшения глубины, на которой происходит поглощение излучения [5], но и за счет роста температурной компоненты поглощательной способности.

Заключение

Из результатов проведенного анализа следует, что основной механизм изменения поглощательной способности при фемтосекундных воздействиях на полупроводники обусловлен квадратичной зависимостью поглощательной способности от температуры электронного газа. Дополнение существующей модели двухфотонного фотовозбуждения кремния с учетом внешней эмиссии динамикой поглощательной способности позволило получить пространственно-временное распределение концентрации неравновесных носителей, обеспечивающее более благоприятные условия для возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов, что соответствует типу микроstructures, наблюдаемых экспериментально. Изменение поглощательной способности в процессе фемтосекундного фотовозбуждения кремния оказывает существенное влияние на динамику удельного поглощенного потока, т.е. его нужно учитывать при оценках режимов ультракороткой лазерной обработки полупроводников.

Авторы благодарны С.В. Заботнову за предоставленную фотографию микроstructuring поверхности кремния, а также Г.А. Марциновскому за полезные обсуждения.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ 12-02-01194-а, 13-02-00033-а, 13-02-00971-а и ведущей научной школы НШ-619.2012.2.

Литература

1. Gattass R., Mazur E. Femtosecond laser micromachining in transparent materials // Nat. Phot. – 2008. – V. 2. – P. 219–225.
2. Juodkazis S., Mizeikis V., Misawa H. Three-dimensional microfabrication of materials by femtosecond lasers for photonics applications // J. App. Phys. – 2009. – V. 106. – 051101 (14 pages).
3. Bellini N., Vishnubhatla K.C., Bragheri F., Ferrara L., Minzioni P., Ramponi R., Cristiani I., Osellame R. Femtosecond laser fabricated monolithic chip for optical trapping and stretching of single cells // Opt. Exp. – 2010. – V. 18. – P. 4679–4688.
4. Sibbett W., Lagatsky A.A., Brown C.T.A. The development and application of femtosecond laser systems // Opt. Exp. – 2012. – V. 20. – № 7. – P. 6989–7001.
5. Gamaly E.G. The physics of ultra-short laser interaction with solids at non-relativistic intensities // Phys. Rep. – 2011. – V. 508. – P. 91–243.
6. Марциновский Г.А., Смирнов Д.С., Шандыбина Г.Д., Заботнов С.В., Головань Л.А., Тимошенко В.Ю., Кашкаров П.К. Ультракороткие возбуждения поверхностных поляритонов и волноводных мод в полупроводниках // Оптика и спектроскопия. – 2008. – Т. 105. – № 1. – С. 75–81.
7. Остапенко И.А., Заботнов С.В., Шандыбина Г.Д., Головань Л.А., Червяков А.В., Рябчиков Ю.В., Яковлев В.В., Тимошенко В.Ю., Кашкаров П.К. Микро- и наноструктурирование поверхности кристаллического кремния под действием фемтосекундных лазерных импульсов // Известия РАН. Сер. физическая. – 2006. – Т. 70. – № 9. – С. 1315–1317.
8. Либенсон М.Н. Лазерно-индуцированные оптические и термические процессы в конденсированных средах и их взаимное влияние. – СПб: Наука, 2007. – 423 с.
9. Dyukin R.V., Martsinovskiy G.A., Sergaeva O.N., Shandybina G.D., Svirina V.V., Yakovlev E.B. Interaction of Femtosecond Laser Pulses with Solids: Electron/Phonon/Plasmon Dynamics // Laser Pulses – Theory, Technology and Applications / Ed. by Igor Peshko. – Rijeka: InTech, 2012. – P. 197–218.
10. Golosov E.V., Ionin A.A., Kolobov Y.R., Kudryashov S.I., Ligachev A.E., Makarov S.V., Novoselov Y.N., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V. Topological evolution of self-induced silicon nanogratings during prolonged femtosecond laser irradiation // Applied physics A. Material science & processing. – 2011. – V. 104. – P. 701–705.
11. Han Y., Qu S. The ripples and nanoparticles on silicon irradiated by femtosecond laser // Chemical Physics Letters. – 2010. – V. 495. – P. 241–244.

Гук Игорь Владимирович

– Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, аспирант, igorguk@yandex.ru

Шандыбина Галина Дмитриевна

– Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, кандидат физ.-мат. наук, доцент, corchand@gmail.com

Яковлев Евгений Борисович

– Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, доктор технических наук, профессор, yak@lastech.ifmo.ru