

О механизме поглощения фемтосекундных лазерных импульсов при плавлении и абляции Si и GaAs

М. Б. Агранат⁺, С. И. Анисимов^{+*}, С. И. Ашитков⁺, А. В. Овчинников⁺, П. С. Кондратенко[△], Д. С. Ситников⁺,
В. Е. Фортов⁺

⁺ Институт теплофизики экстремальных состояний Объединенного института высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

^{*} Институт теоретической физики им. Ландау РАН, 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

[△] Институт проблем безопасности энергетики РАН, 113191 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 апреля 2006 г.

Измерены пороги плавления и абляции при воздействии на Si и GaAs фемтосекундных импульсов хром-форстеритового лазера на длине волны 1240 нм, когда энергия кванта излучения меньше ширины запрещенной зоны. Малое отличие этих величин от порогов плавления и абляции, измеренных при воздействии импульсов второй гармоники на длине волны 620 нм с энергией кванта излучения больше ширины запрещенной зоны, невозможно объяснить с помощью известных теоретических моделей. Предложен новый подход к механизму возникновения электронно-дырочной плазмы и образованию тонкого сильно поглощающего поверхностного слоя в полупроводниках при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов видимого и инфракрасного диапазонов спектра излучения, основанный на лавинном механизме заполнения зоны проводимости.

PACS: 63.90.+ t; 78.90.+ t

Уникальность воздействия фемтосекундных импульсов на полупроводники состоит в том, что длительность импульса в этом случае меньше характерного времени релаксационных процессов. Это позволяет создавать в течение действия импульса в поверхностном слое электронно-дырочную плазму с концентрацией носителей $\sim 10^{22} \text{ см}^{-3}$ [1, 2]. Передача энергии в решетку приводит к плавлению поверхностного слоя за времена от сотен фемтосекунд до нескольких десятков пикосекунд [3], в зависимости от интенсивности лазерного импульса, и образованию зоны расплава с высоким коэффициентом отражения с последующей рекристаллизацией за времена порядка нескольких наносекунд. В случае превышения порога абляции часть расплава удаляется, а на поверхности образуется кратер. Особую роль в этих процессах играет механизм поглощения излучения, определяющий величины порогов плавления и абляции.

В работе [1] сообщалось о результатах экспериментальных исследований динамики образования и рекомбинации электронно-дырочной плазмы в кремнии под действием фемтосекундных лазерных импульсов, где в pump-probe схеме измерений в качестве зондирующего импульса было использовано излучение хром-форстеритовой лазерной системы на длине волны 1240 нм. В этих экспериментах энергия кванта зондирующего излучения была меньше ширины запрещенной зоны E_g для Si. Это позволило изучить

процессы образования и рекомбинации электронно-дырочной плазмы при концентрации электронов в зоне проводимости менее 10^{21} см^{-3} и потоках энергии нагревающего импульса ниже порога плавления поверхностного слоя.

В настоящей работе проводились измерения порогов плавления F_m и абляции F_a для Si и GaAs при воздействии нагревающего фемтосекундного импульса хром-форстеритового лазера на основной частоте, когда $\hbar\omega < E_g$, и данные широкозонные полупроводники ($E_g \approx 1.1 \text{ эВ}$ для Si и $E_g \approx 1.4 \text{ эВ}$ для GaAs) являются фактически прозрачными диэлектриками. Аналогичные измерения величин F_m и F_a проводились также на частоте второй гармоники, когда $2\hbar\omega > E_g$, и длина пробега фотона на несколько порядков меньше, чем на основной частоте.

Источником излучения служила фемтосекундная хром-форстеритовая лазерная система с длительностью импульсов 80 фс, интенсивностью $10^{11} \div 10^{13} \text{ Вт/см}^2$ на длине волны 1240 нм [4]. Контраст импульсов по мощности составлял не менее 10^4 за 1 пс до максимума импульса и более 10^6 за 2 пс и в наносекундном диапазоне.

В экспериментах использовалась pump-probe методика микроскопической съемки поверхности с фемтосекундной лазерной подсветкой, позволяющая исследовать коэффициент отражения мишени в области нагрева с пространственным и временным раз-

решением [5, 6]. Излучение накачки p -поляризации фокусировалось под углом 45° на поверхность образца линзой с фокусным расстоянием 150 мм. Воздействии на мишень осуществлялось либо на основной длине волны 1240 нм (энергия кванта $\hbar\omega = 0.99$ эВ), либо на длине волны второй гармоники 620 нм (энергия кванта $2\hbar\omega = 1.98$ эВ). Преобразование во вторую гармонику осуществлялось в кристалле LBO длиной 5 мм с эффективностью $\approx 40\%$. Пространственное распределение излучения накачки на мишени соответствовало гауссову. Выбор поляризации излучения и плавная регулировка мощности осуществлялись с помощью поляризационного ослабителя, состоящего из поляризатора и полуволновой фазовой пластины. Изображения поверхности мишени, подсвечиваемой слабыми зондирующими импульсами на длине волны 620 нм с изменяемой временной задержкой, регистрировались с помощью CCD камеры с диапазоном 8 бит. Перенос изображения с 10-кратным увеличением осуществлялся микрообъективом с числовой апертурой 0.2. Пространственное разрешение составляло при этом 2 мкм.

Эксперименты проводились с монокристаллическими (100) образцами Si и GaAs, представляющими собой полированные с обеих сторон пластины толщиной 440 и 620 мкм, соответственно. Оценка величин линейных коэффициентов поглощения для данных образцов на длине волны 1240 нм проводилась по результатам измерений коэффициентов отражения и пропускания при низкой мощности непрерывного излучения (200 мВт). Соответствующие значения составили 1.4 см^{-1} для Si и 0.6 см^{-1} для GaAs. Величины коэффициентов поглощения на длине волны 620 нм по данным [7] примерно на три порядка превышают эти значения и составляют $3.4 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ для Si и $4 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$ для GaAs.

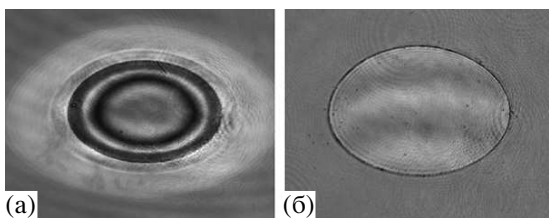


Рис.1. Характерные пространственные картины отражения зондирующего импульса при абляции поверхностного слоя GaAs: (а) при задержке зондирующего импульса 1.5 нс, (б) кратер. Зондирующий импульс – 620 нм, нагревающий импульс – 1240 нм, $F_0 = 0.4 \text{ Дж/см}^2$

Величина плотности энергии нагревающего импульса, соответствующая порогу абляции поверх-

ностного слоя, определялась по появлению кратера. На рис.1 приведены изображения поверхности GaAs (зондирующий импульс – 620 нм) при временной задержке 1.5 нс (а) и кратера (б), образованного в результате абляции под действием импульса накачки 1240 нм с пространственным гауссовым распределением в фокусе и плотностью энергии выше порога абляции. Внутренний эллипс с характерными интерференционными кольцами (рис.1а), образующимися в результате отделения поверхностного слоя мишени, соответствует области, в которой плотность энергии лазерного импульса превышала порог абляции материала [3].

Для определения величины F_a применялась методика измерения порогов для лазерных импульсов с пространственным гауссовым распределением интенсивности по сечению пучка [6, 8]. При наклонном падении такого пучка на мишень пространственное распределение плотности энергии $F(x, y)$ определяется выражением

$$F(x, y) = F_0 \exp \left\{ -\frac{(x \cos \theta)^2 + y^2}{r_0^2} \right\}. \quad (1)$$

Здесь F_0 – плотность энергии в центре пучка, r_0 – эффективный радиус пучка на уровне e^{-1} , θ – угол падения, x, y – координаты на поверхности образца в плоскости падения и по нормали к ней, соответственно. Учитывая, что $F_0 = E/\pi r_0^2$, где E – полная энергия импульса, и приравняв выражение (1) порогу абляции F_a , легко получить соотношение между порогом абляции, энергией импульса и полуосями эллиптического кратера a и b :

$$a^2 = r_0^2 \ln \left\{ \frac{E}{\pi r_0^2 F_a} \cos \theta \right\}, \quad b = \frac{a}{\cos \theta}. \quad (2)$$

В эксперименте измерялась зависимость поперечных размеров кратера от энергии лазерных импульсов. Точка пересечения прямой, экстраполирующей экспериментальные значения, с осью абсцисс соответствует пороговой энергии E_a , при которой возникает кратер, а наклон прямой определяет величину r_0 . Далее, из выражения (2), полагая $a = 0$, находим величину $F_a = E_a \cos \theta / \pi r_0^2$.

При плотности энергии нагревающего импульса ниже порога абляции, в диапазоне примерно $0.5F_a < F < F_a$, наблюдается плавление поверхностного слоя. На рис.2 приведены изображения поверхности GaAs, демонстрирующие динамику плавления поверхностного слоя (внешний эллипс с высоким значением коэффициента отражения на рис 1а также соответствует зоне плавления). Так как распределение интенсивности в пятне фокусировки является гауссовым, то плавление зондируемого поверхностного слоя

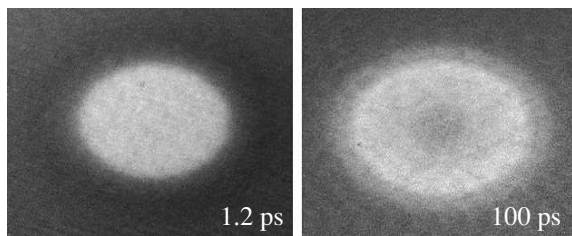


Рис.2. Динамика отражения зондирующего импульса при плавлении поверхностного слоя GaAs, нагревающий импульс – 1240 нм, зондирующий импульс – 620 нм, $F_0 < F_a$

в центре и на периферии пятна происходит с различной скоростью и обусловлено, возможно, разными механизмами [3]. Окончательно, как это показано и в работах других авторов, область плавления формируется за время не более 0.5 нс [3], которое меньше характерных времен рекристаллизации, лежащих в наносекундном диапазоне. Таким образом, аналогично измерениям размеров кратеров при определении порога абляции, размеры области плавления определялись с помощью ринг-пробе методики по отражению зондирующего излучения при задержке 0.5 нс относительно нагревающего лазерного импульса. В качестве примера на рис.3 приведены экспериментальные

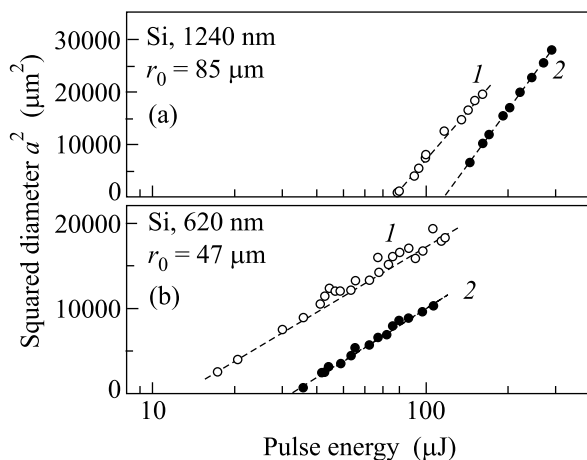


Рис.3. Зависимость квадрата размера малой полуоси эллипса от падающей энергии импульса p -поляризации для Si на длине волны 1240 нм (а) и 620 нм (б) для области плавления (1) и абляции (2). Точки – экспериментальные значения, линии – линейная интерполяция

зависимости квадрата малой полуоси кратера и области плавления от энергии нагревающего лазерного импульса на длине волны излучения 1240 и 620 нм для Si. Аналогичные измерения были проведены для GaAs.

Результаты измерений пороговых значений плавления и абляции по плотности энергии нагревающего импульса p -поляризации при угле падения 45° на длинах волн 1240 и 620 нм для GaAs и Si представлены в таблице.

| | Длина волны, нм | F_m , мДж/см ² | F_a , мДж/см ² |
|------|-----------------|-----------------------------|-----------------------------|
| Si | 620 | 140 | 300 |
| | 1240 | 200 | 330 |
| GaAs | 620 | 90 | 190 |
| | 1240 | 130 | 200 |

Для определения порогов плавления и абляции по плотности энергии, поглощенной в поверхностном слое полупроводника, необходимо учитывать величину коэффициента отражения. Коэффициенты отражения на длинах волн 1240 и 620 нм, рассчитанные по модели Друде, начинают сильно зависеть от концентрации электронов проводимости при $N \sim 10^{21} \div 10^{22} \text{ см}^{-3}$ [1]. Однако отношение R_{1240}/R_{620} всегда больше единицы и при $N \sim 10^{22} \div 3 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ величина этого отношения ≈ 1.3 (при эффективной массе носителей $m_{\text{eff}} = 0.2m_e$ [2], где m_e – масса электрона). Строго говоря, величина коэффициента отражения будет меняться в течение действия лазерного импульса, и измерения ее динамики в процессе воздействия могут дать ценную информацию о механизме поглощения. Это является задачей будущих экспериментов, в которых длительность зондирующего импульса должна быть много меньше длительности нагревающего импульса.

Таким образом, результаты измерений показали, что пороги плавления и абляции при воздействии лазерного импульса с длиной волны излучения 1240 нм практически совпадают по величине с порогами плавления и абляции при воздействии лазерного импульса с длиной волны излучения 620 нм, для которого полупроводники являются непрозрачными. Полученные результаты не согласуются с развитыми в работе [2] представлениями о механизмах поглощения, плавления и абляции. Согласно [2], основной вклад в образование плазмы вносят двухфотонные переходы. В частности, для кремния при воздействии лазерного импульса с длиной волны излучения 620 нм (энергия кванта больше E_g) вблизи порога плавления $F_m = 170 \text{ мДж/см}^2$ вклад двухфотонных переходов в поглощение на порядок превышает вклад от однофотонного поглощения. Оцененный из этих данных коэффициент двухфотонного поглощения равен $\beta \sim 50 \text{ см/ГВт}$.

Чтобы объяснить примерное равенство порогов плавления и абляции для основной частоты и второй гармоники, можно предположить, что механизм

поглощения в широкозонных полупроводниках Si и GaAs при высоких интенсивностях излучения, приводящих к плавлению и абляции, аналогичен механизму пробоя прозрачных диэлектриков при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов – как в случае $\hbar\omega < E_g$ ($\lambda = 1240$ нм), так и в случае $2\hbar\omega > E_g$ ($\lambda = 620$ нм).

Затравочные электроны в зоне проводимости, возникшие, например, за счет двух (или более) фотонных процессов, ведут себя как автономная система. При этом они поглощают энергию лазерного излучения, взаимодействуя с фононами (внутризонное поглощение). В результате поглощения среди них появляются электроны, энергия ϵ которых больше ширины запрещенной зоны, $\epsilon > E_g$. Такие электроны способны путем ударной ионизации порождать электронно-дырочные пары, приводя к увеличению концентрации электронов в зоне проводимости. Скорость этого процесса (она определяет производную концентрации по времени) пропорциональна количеству электронов проводимости с энергией $\epsilon > E_g$. Количество таких высокоэнергетических электронов находится в прямой зависимости от поглощенной энергии. В свою очередь, поглощение пропорционально концентрации электронов проводимости n . В результате процесс рождения электронно-дырочных пар приобретает характер лавины. Этот процесс детально изучен, например, в работах [9–12]. В [12] показано, в частности, что при сравнительно узкой запрещенной зоне, $E_g = 2\hbar\omega$, постоянная развития лавины $\gamma \propto I^{0.4}$, и обсуждается вопрос о конкуренции между лавинным и многофотонным механизмами оптического пробоя. Оценки, основанные на результатах статей [11, 12], показывают, что при лазерной интенсивности порядка $I \sim 10^{12}$ Вт/см² концентрация электронов в зоне проводимости наиболее естественно может быть объяснена лавинной ионизацией. Сильное отражение начинается, когда плазменная частота сравнивается с частотой лазерного излучения и действительная часть диэлектрической постоянной обращается в нуль, $\text{Re}\epsilon = 0$. Для основной длины волны $\lambda = 1240$ нм это происходит при концентрации электронов $1.4 \cdot 10^{29}$ см⁻³, которая при лавинном механизме достигается за 20 фс. Разрушение решетки происходит, когда концентрация электронов проводимости достигает некоторой критической величины $n_{cr} \sim 10^{22} \div 10^{23}$ см⁻³ [3]. Соответствующая поверхностная плотность поглощенной энергии F_{cr} оказывается слабо (логарифмически) зависящей как от затравочной величины концентрации, так и от критической концентрации, и прямо пропорциональной ширине запрещенной зоны.

Механизм пробоя, основанный на лавинной ионизации, не является новым. Он был предложен и активно изучался ранее применительно к диэлектрикам с широкой запрещенной зоной [9–12]. В экспериментах с диэлектриками BaF₂, CaF₂, MgF₂, LiF при длительности падающего импульса 100 фс были получены значения критической плотности энергии $F_{cr} = 1.6 \div 2.6$ Дж/см². Ширина запрещенной зоны в указанных диэлектриках составляет $E_g \approx 10$ эВ. Исследования проводились на длинах волн излучения, близких к тем, что и в нашей работе.

В то же время, ширина запрещенной зоны в полупроводниках Si и GaAs, исследовавшихся в настоящей работе, равна, соответственно, 1.1 и 1.4 эВ. Установленные нами пороги для обоих полупроводников оказались приблизительно одинаковыми и равными примерно 0.2 Дж/см². Сравнение этой величины с порогом пробоя диэлектриков подтверждает вывод о том, что в фемтосекундном диапазоне длительностей лазерных импульсов отношение пороговых плотностей энергии приближенно равно отношению ширины запрещенных зон. Таким образом, интерпретация механизма пробоя в Si и GaAs при действии фемтосекундных лазерных импульсов, основанная на лавинной ионизации, представляется вполне оправданной.

-
1. С. И. Ашитков, А. В. Овчинников, М. Б. Агранат, Письма в ЖЭТФ **79**, 657 (2004).
 2. K. Sokolowski-Tinten and D. von der Linde, Phys. Rev. B **61**, 2643 (2000).
 3. K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, M. Boring et al., Phys. Rev. B **58**, R11805 (1998).
 4. М. Б. Агранат, С. И. Ашитков, А. А. Иванов и др., КЭ **34**, 506 (2004).
 5. С. И. Ашитков, М. Б. Агранат, П. С. Кондратенко и др., Письма в ЖЭТФ **75**, 96 (2002).
 6. D. von der Linde and H. Shuler, J. Opt. Soc. Am. B **13**, 216 (1996).
 7. E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids II*, Academic Press, San Diego, 1991.
 8. P. Mannion, J. Magee, E. Coyne et al., Proc. SPIE **4876**, 470 (2003).
 9. A. P. Joglekar, H. Liu, E. Meyhofer et al., Proc. of the National Academy of Sciences USA, v. **101**, no 16, 2004, p. 5856.
 10. S. Mao, F. Quere, S. Guizard et al., Appl. Phys. A **79**, 1695 (2004).
 11. B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman et al., Phys. Rev. B **53**, 1749 (1996).
 12. Б. Г. Горшков, А. С. Елифанов, А. А. Маненков, ЖЭТФ **76**, 617 (1979).