

# Учет энергетического распределения свободных носителей в скоростных уравнениях, описывающих их динамику при взаимодействии диэлектриков с мощным лазерным излучением

К. В. Львов<sup>+1)</sup>, С. Ю. Стремоухов<sup>+\*</sup>

<sup>+</sup>Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, 119234 Москва, Россия

<sup>\*</sup>Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 132182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 21 апреля 2023 г.

После переработки 12 мая 2023 г.

Принята к публикации 22 мая 2023 г.

Проведено исследование динамики свободных носителей в  $\text{CaF}_2$ , индуцированных мощным фемтосекундным лазерным излучением ближнего (1.24 мкм) и среднего (4.4 мкм) инфракрасного диапазонов. Показано, что при флюенсах лазерного излучения, достаточных для активного действия ударной ионизации, после прохождения лазерного импульса формируется такое распределение носителей по энергии, форма которого не зависит от параметров лазерного излучения (флюенса, длительности, длины волны) и ширины запрещенной зоны материала. При этом средняя кинетическая энергия свободных носителей после действия импульса составляет 0.56 от ширины запрещенной зоны. Учет дисперсионного слагаемого в скоростных моделях динамики носителей позволяет снизить на 30 % расхождение в средней кинетической энергии со статистической моделью Фоккера–Планка. Применение скоростных моделей динамики носителей вместо требующих больших временных и вычислительных ресурсов статистических моделей позволяет проводить расчеты в несколько десятков раз быстрее.

DOI: 10.31857/S1234567823120066, EDN: evvooq

**Введение.** Одним из механизмов генерации гармоник в диэлектриках при воздействии на них мощного фемтосекундного лазерного излучения является динамика свободных носителей в зоне проводимости, индуцированных лазерным излучением [1–4]. Возбуждение в среде свободных носителей обуславливает поглощение лазерной энергии и дефокусировку лазерного пучка при его распространении через среду. К настоящему времени развиты различные экспериментальные методы диагностики состояния среды и определения энергетических порогов модификации ее объема: оптическая микроскопия локального изменения показателя преломления [5], регистрация изменения коэффициента пропускания [6], темнопольная микроскопия [7, 8]. Комплексное исследование диагностики состояния среды производится в тесном контакте экспериментальных исследований с теоретическими расчетами. Например, задача генерации мощного когерентного излучения требует теоретического рассмотрения откликов электронов в атоме на лазерное поле и формирование ими макроскопического тока носителей [9]. Для разработки способов получения сверхкоротких лазерных им-

пульсов необходимо более тщательное изучение механизмов воздействия лазерного поля на среду [10]. Изучение методов модификации поверхности и объема материалов невозможно без анализа механизмов передачи лазерной энергии твердому телу [11, 12]. Эти важные для практического применения научные задачи требуют исследования процессов генерации свободных электронов в диэлектриках и полупроводниках и их динамики в зоне проводимости, вызванной действием мощного фемтосекундного лазерного излучения.

Наиболее корректными с физической точки зрения моделями динамики свободных носителей являются статистические модели, основанные на уравнении Больцмана [13, 14], либо его упрощении – уравнении Фоккера–Планка [15, 16]. Согласно последнему, динамика плотности распределения носителей  $f(\varepsilon, t)$  в зоне проводимости описывается уравнением:

$$\frac{\partial f}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left( \frac{1}{3} \sigma(\varepsilon) E^2(t) f(\varepsilon, t) \right) + \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial \varepsilon^2} \left( \frac{4}{3} \varepsilon \sigma(\varepsilon) E^2(t) f(\varepsilon, t) \right) + S_\varepsilon(\varepsilon, t), \quad (1)$$

где  $S_\varepsilon(\varepsilon, t)$  – плотность генерации (или рекомбинации) носителей,  $E^2(t)$  – квадрат огибающей ла-

<sup>1)</sup>e-mail: lvov.kv14@physics.msu.ru

зерного поля,  $\varepsilon$  – кинетическая энергия носителей,  $\sigma(\varepsilon) = \frac{e^2 \nu(\varepsilon)}{m_e(\nu^2(\varepsilon) + \omega^2)}$  – проводимость носителей,  $e$  – заряд электрона,  $m_e$  – эффективная масса носителей,  $\nu(\varepsilon)$  – частота столкновений носителей,  $\omega$  – частота лазерного поля.

Правая часть уравнения (1) – первые два слагаемых в разложении уравнения Больцмана по полиномам Лежандра. Первое слагаемое описывает лазерный нагрев свободных носителей, в то время как второе слагаемое – дисперсию плотности распределения носителей по энергии. Второе слагаемое может быть истолковано как диффузия носителей по энергетическому спектру с характерным “коэффициентом диффузии”  $D = \frac{2}{3} \varepsilon \sigma(\varepsilon) E^2(t)$ . С физической точки зрения оно означает “расплывание” плотности носителей по энергетическому спектру при наличии локальных градиентов в плотности распределения носителей, возникающих, например, при фотоионизации или ударной ионизации.

Несмотря на высокую точность расчетов по модели Фоккера–Планка (F-Pl), ее применение в задаче распространения лазерного излучения через вещество выглядит плохо реализуемым из-за большой длительности вычислений и повышенных требований к производительности вычислительных машин.

Альтернативой статистическим моделям служат скоростные модели динамики носителей, описывающих их распределение по конечному числу дискретных уровней энергии в зоне проводимости: SRE (*Single Rate Equation*) [17], MRE (*Multiple Rate Equation*) [18] и другие модификации этих моделей, учитывающих все более тонкие эффекты. Так, например, в улучшенной модели MRE (EMRE) [19] учитываются столкновения электронов между собой и с нейтральными атомами, вводится усредненный уровень, учитывающий наличие носителей выше верхнего энергетического уровня, а также рассматривается ударная ионизация по модели Келдыша [20]. В модели [21], также основанной на MRE, добавляется взаимодействие электронов с фонанами, предлагается использовать ее для определения порога лазерного пробоя полупроводников. Ключевой особенностью всех существующих скоростных моделей является их учет только первого слагаемого в правой части уравнения (1), описывающего нагрев носителей под действием лазерного излучения.

В данной работе исследуется динамика носителей с учетом дисперсионного слагаемого (второе слагаемое в правой части уравнения (1)), описывающее “расплывание” плотности распределения носителей по зоне проводимости. Дисперсионное слагаемое внедряется в модель EMRE [19] и анализируются

его влияние на генерируемую плотность индуцированных носителей и их среднюю кинетическую энергию при воздействии мощного фемтосекундного лазерного излучения на диэлектрическую среду. Кроме того, в работе демонстрируется способ учета в модели EMRE распределения носителей в высокоэнергетической части энергетического спектра.

### Методы.

*Модель Фоккера–Планка (F-Pl).* В уравнении Фоккера–Планка (1) в качестве источника свободных носителей рассматривается фотоионизация, скорость которой  $W(I(t))$  зависит от интенсивности лазерного излучения  $I(t)$  и описывается формулой Келдыша [22], а также ударная ионизация  $\nu_{\text{imp}}(\varepsilon)$ :

$$S_\varepsilon(\varepsilon, t) = w(\varepsilon, I(t)) - \nu_{\text{imp}}(\varepsilon) f(\varepsilon, t) + 2\beta \nu_{\text{imp}}(\beta \varepsilon) f(\beta \varepsilon, t). \quad (2)$$

Скорость ударной ионизации  $\nu_{\text{imp}}(\varepsilon)$  отлична от нуля только для тех носителей, чья энергия превышает критическое значение  $\varepsilon_{cr} = \left(1 + \frac{m_r}{m_h}\right) E_g$ , где  $m_r$  – приведенная масса электрона и дырки, чьи эффективные массы равны  $m_e$  и  $m_h$ ,  $E_g$  – ширина запрещенной зоны. Выражение для  $\nu_{\text{imp}}(\varepsilon)$  было получено Келдышем в работе [20], однако только для энергий, близких к критическому значению:  $\varepsilon - \varepsilon_{cr} \ll \varepsilon_{cr}$ . Поскольку при численном решении уравнения (1) учитываются также области энергии  $\varepsilon \gg \varepsilon_{cr}$ , то требуется использовать более общую формулу, полученную в работе [23]:

$$\nu_{\text{imp}}(\varepsilon) = \rho_{\text{at}} \sqrt{\frac{2\varepsilon}{m_e}} \cdot 4\pi a_0^2 \left(\frac{\text{Ry}}{E_g}\right)^2 \cdot \frac{\varepsilon_{cr}}{\varepsilon} \cdot \left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_{cr}}{\varepsilon + \varepsilon_{cr}}\right)^{3/2} \cdot \left(1 + \frac{2}{3} \left(1 - \frac{\varepsilon_{cr}}{2\varepsilon}\right) \ln \left(2.7 + \sqrt{\frac{\varepsilon}{\varepsilon_{cr}} - 1}\right)\right), \quad (3)$$

где  $\rho_{\text{at}}$  – плотность атомов,  $a_0$  – боровский радиус, Ry – постоянная Ридберга.

Числовой коэффициент  $\beta$  в (2) показывает, во сколько раз уменьшается энергия электрона, участвующего в одном акте ударной ионизации. В предположении параболичности валентной зоны и зоны проводимости значение этого коэффициента напрямую следует из законов сохранения энергии и импульса:

$$\beta = \left(\frac{2 - m_r/m_e}{1 - m_r/m_e}\right)^2. \quad (4)$$

Нагрев носителей в лазерном поле определяется проводимостью  $\sigma(\varepsilon) = \frac{e^2 \nu(\varepsilon)}{m_e(\nu^2(\varepsilon) + \omega^2)}$ , при этом учитывались только электрон-электронные и электрон-нейтральные столкновения, зависимость частоты ко-

торых от энергии носителей задается следующими выражениями [24]:

$$\begin{aligned} \nu(\varepsilon) &= \nu_{ee}(\varepsilon) + \nu_{en}(\varepsilon), \\ \nu_{ee}(\varepsilon) &= \rho \langle \nu \rangle \sigma_{ee} = \frac{32\epsilon_0}{3e^2} \sqrt{\frac{2\pi\varepsilon}{3m_e}} \varepsilon_{\text{mean}}, \\ \nu_{en}(\varepsilon) &= (\rho_{\text{at}} - \rho) \langle \nu \rangle \sigma_{en} \approx \sqrt{\frac{16\varepsilon}{3\pi m_e}} (\rho_{\text{at}} - \rho) \sigma_{en}, \end{aligned} \quad (5)$$

где  $\langle \nu \rangle$  – средняя скорость носителей с энергией  $\varepsilon$ ,  $\epsilon_0$  – диэлектрическая постоянная,  $\varepsilon_{\text{mean}}$  – средняя кинетическая энергия носителей,  $\rho$  – полная плотность свободных носителей,  $\sigma_{en} \approx 3 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$  – сечение электрон-нейтральных столкновений.

В данной работе по результатам расчетов динамики плотности распределения носителей в зоне проводимости вычислялись полная плотность свободных носителей  $\rho(t)$ :

$$\rho(t) = \int_0^\infty f(\varepsilon, t) d\varepsilon \quad (6)$$

и средняя кинетическая энергия носителей  $\varepsilon_{\text{mean}}(t)$ :

$$\varepsilon_{\text{mean}}(t) = \frac{\int_0^\infty \varepsilon f(\varepsilon, t) d\varepsilon}{\rho(t)}. \quad (7)$$

Для численного решения уравнения Фоккера–Планка (1) была построена 6-точечная разностная схема, которая является явной по времени и неявной по энергии. На каждом шаге по времени методом прогонки вычислялись значения плотности распределения  $f(\varepsilon, t)$  для каждого значения энергии, при этом граничные условия при  $\varepsilon \rightarrow \infty$  обеспечивали условие  $f(\varepsilon \rightarrow \infty, t) \rightarrow 0$  а граничные условия при  $\varepsilon = 0$  – неизменность полной плотности носителей в отсутствии источников носителей (при  $S(\varepsilon, t) = 0$ ).

Уравнение Фоккера–Планка, являющееся приближением уравнения Больцмана, справедливо, если средняя энергия, полученная носителями в электрическом поле за среднее время столкновений, меньше энергии носителей [15]:  $\frac{e^2 E^2 \nu}{m_e(\omega^2 + \nu^2)} \cdot \frac{1}{\nu} < \varepsilon$ . Из этого условия можно получить оценку максимальной интенсивности лазерного излучения  $I_{\text{max}}$ , при которой модель F-P1 остается справедливой:

$$I_{\text{max}} = \frac{\varepsilon m_e \omega^2 c n_0 \epsilon_0}{2e^2} \approx 4 \cdot 10^{12} \cdot \frac{E_g [\text{эВ}]}{\lambda^2 [\text{мкм}]} \frac{\text{Вт}}{\text{см}^2}, \quad (8)$$

где  $c$  – скорость света в вакууме,  $n_0$  – показатель преломления среды,  $\lambda$  – длина волны лазерного излучения.

**Модель EMRE.** В скоростной модели динамики свободных носителей EMRE, используемой в данной

работе, плотность распределения носителей  $f(\varepsilon, t)$  в зоне проводимости заменяется на уровни энергии  $\varepsilon_k = k\Delta\varepsilon$ , отделенные друг от друга энергией фотона  $\Delta\varepsilon = \hbar\omega$  и характеризуемые населенностью  $\rho_k(t) = \int_{\varepsilon_k - \Delta\varepsilon/2}^{\varepsilon_k + \Delta\varepsilon/2} f(\varepsilon, t) d\varepsilon$  (рис. 1). Динамика населенностей уровней энергии описывается системой обыкновенных дифференциальных уравнений, которая подробно описана в [19]. Модель EMRE основывается на более известной модели MRE [18], однако отличается от нее двумя особенностями:

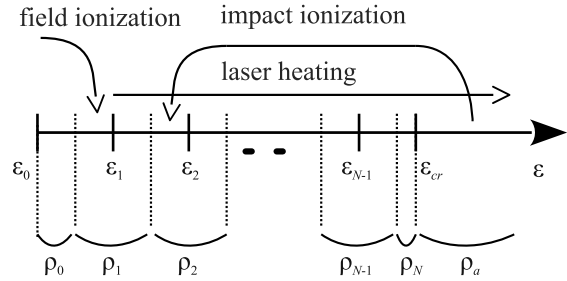


Рис. 1. Схема энергетических уровней и процессы, определяющие динамику свободных носителей в модели EMRE

1) скорости однофотонного поглощения  $\alpha_{1ph}(\varepsilon)$  и ударной ионизации  $\nu_{\text{imp}}(\varepsilon)$  зависят от энергии носителей (см. формулы (3), (5));

2) все уровни энергии, расположенные выше критического значения энергии  $\varepsilon_{cr}$ , объединены в один усредненный уровень, характеризуемый населенностью  $\rho_a(t)$  и плотностью энергии  $u_a(t)$ :

$$\begin{aligned} \rho_a(t) &= \int_{\varepsilon_{cr}}^\infty f(\varepsilon, t) d\varepsilon, \\ u_a(t) &= \int_{\varepsilon_{cr}}^\infty \varepsilon f(\varepsilon, t) d\varepsilon. \end{aligned} \quad (9)$$

Для внедрения дисперсионного слагаемого (второго слагаемого в правой части уравнения (1)) в модель EMRE, уравнение (1) было проинтегрировано по интервалам энергии  $[\varepsilon_k - \Delta\varepsilon/2, \varepsilon_k + \Delta\varepsilon/2]$ :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_k}{\partial t} &= -\frac{1}{3} \sigma(\varepsilon) E^2(t) f(\varepsilon, t) \Big|_{\varepsilon_k + \Delta\varepsilon/2} + \\ &+ \frac{1}{3} \sigma(\varepsilon) E^2(t) f(\varepsilon, t) \Big|_{\varepsilon_k - \Delta\varepsilon/2} + \\ &+ \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left( \frac{4}{3} \varepsilon \sigma(\varepsilon) E^2(t) f(\varepsilon, t) \right) \Big|_{\varepsilon_k + \Delta\varepsilon/2} - \\ &- \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left( \frac{4}{3} \varepsilon \sigma(\varepsilon) E^2(t) f(\varepsilon, t) \right) \Big|_{\varepsilon_k - \Delta\varepsilon/2} + S(\varepsilon_k, t). \end{aligned} \quad (10)$$

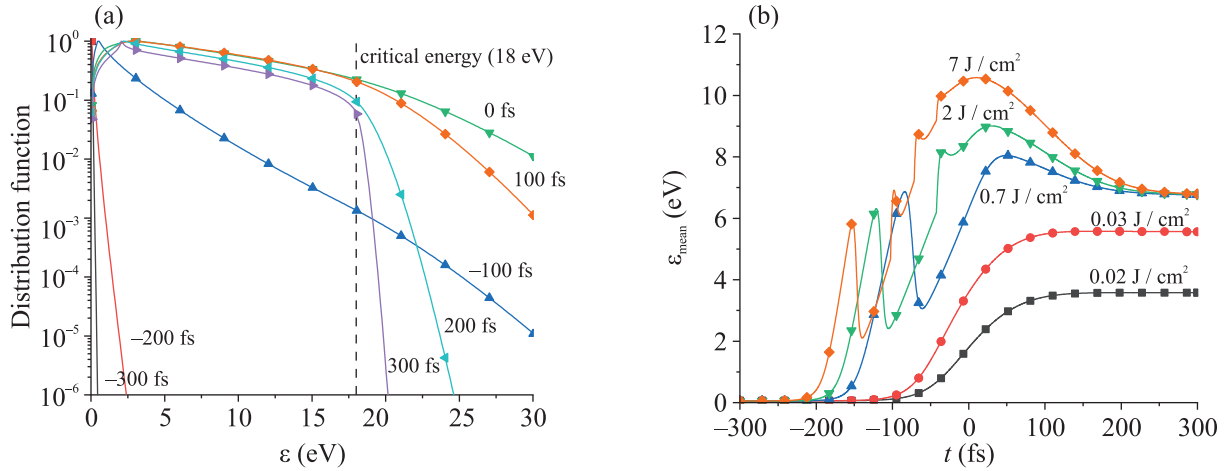


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Плотность распределения носителей по зоне проводимости для разных моментов времени при прохождении через  $\text{CaF}_2$  лазерного импульса с флюенсом  $F = 2 \text{ Дж/см}^2$ . Кривые нормированы на максимальное значение. (б) – Динамика средней кинетической энергии носителей при разных флюенсах лазерного излучения. Длина волны  $\lambda = 1.24 \text{ мкм}$

Применяя конечно-разностную аппроксимацию производной по энергии и оценку  $f(\varepsilon_k, t) \approx \frac{\rho_k(t)}{\Delta\varepsilon}$ , получим систему обыкновенных дифференциальных уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_k}{\partial t} = & \frac{E^2(t)}{3\Delta\varepsilon} \cdot \left( \left( \frac{1}{2} + \frac{2\varepsilon_{k-1}}{\Delta\varepsilon} \right) \sigma(\varepsilon_{k-1}) \rho_{k-1} + \right. \\ & \left. + \frac{4\varepsilon_k}{\Delta\varepsilon} \sigma(\varepsilon_k) \rho_k + \left( -\frac{1}{2} + \frac{2\varepsilon_{k+1}}{\Delta\varepsilon} \right) \sigma(\varepsilon_{k+1}) \rho_{k+1} \right) + \\ & + S(\varepsilon_k, t). \end{aligned} \quad (11)$$

Совершенно аналогично модернизируется уравнение для населенности  $\rho_a$  усредненного уровня и плотности его энергии  $u_a$ . При этом делается предположение об экспоненциальном затухании плотности распределения при энергиях выше критического уровня:

$$f(\varepsilon > \varepsilon_{cr}) = f(\varepsilon_{cr}) e^{-\frac{\varepsilon - \varepsilon_{cr}}{\delta\varepsilon}} = \frac{\rho_a^2}{u_a} e^{-\frac{\varepsilon - \varepsilon_{cr}}{\frac{u_a}{\rho_a} - \varepsilon_{cr}}}, \quad (12)$$

что подтверждается результатами моделирования при решении уравнения Фоккера–Планка (1) (см. рис. 2а). Величина  $\delta\varepsilon$  является шириной распределения носителей на усредненном уровне. С учетом экспоненциального распределения свободных носителей в области  $\varepsilon > \varepsilon_{cr}$ , для населенности  $\rho_a$  и плотности энергии  $u_a$  усредненного уровня скоростные уравнения будут следующими:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_a}{\partial t} = & E^2(t) \sigma(\varepsilon_{cr}) \frac{\rho_a^2}{u_a - \varepsilon_{cr} \rho_a} - \\ & - \frac{2}{3} E^2(t) \frac{\partial}{\partial \varepsilon} (\varepsilon_{cr} \sigma(\varepsilon_{cr}) f(\varepsilon_{cr})), \end{aligned} \quad (13)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial u_a}{\partial t} = & E^2(t) \rho_a \left( \sigma(\varepsilon_{cr}) \frac{\varepsilon_{cr} \rho_a}{u_a - \varepsilon_{cr} \rho_a} + \sigma \left( \frac{u_a}{\rho_a} \right) \right) + \\ & + \frac{2}{3} E^2(t) \left( \varepsilon_{cr} \sigma(\varepsilon_{cr}) f(\varepsilon_{cr}) - \right. \\ & \left. - \varepsilon_{cr} \frac{\partial}{\partial \varepsilon} (\varepsilon_{cr} \sigma(\varepsilon_{cr}) f(\varepsilon_{cr})) \right). \end{aligned} \quad (14)$$

**Результаты и обсуждение.** Динамика свободных носителей исследовалась в диэлектрике  $\text{CaF}_2$  (ширина запрещенной зоны 12 эВ, эффективная масса носителей  $m_e = m_h = 9.1 \cdot 10^{-31} \text{ кг}$ , плотность атомов  $\rho_{at} = 5.6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ ), на который падает мощное фемтосекундное лазерное излучение длительностью 170 фс (с гауссовской формой огибающей) и флюенсом до  $F = 8 \text{ Дж/см}^2$ . Начальное распределение носителей по зоне проводимости было выбрано экспоненциальным (что оправдано в силу широкозонности выбранного материала), так чтобы полная плотность носителей составляла величину  $\rho_0 = 10^{-20} \rho_{at}$  (что обусловлено возможным наличием примесей и дефектов в решетке диэлектрика), а средняя кинетическая энергия носителей  $\varepsilon_{\text{mean}} = 0.04 \text{ эВ}$  (что соответствует комнатной температуре). Исследовались два диапазона длин волн: ближний инфракрасный ( $\lambda = 1.24 \text{ мкм}$ , соответствует излучению хромфорстеритового лазера) и средний инфракрасный ( $\lambda = 4.4 \text{ мкм}$ , соответствует излучению  $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$  лазера [11]). Заметим, что, согласно (8), модель F-P1 применима при интенсивностях лазерного излучения, по порядку величины, меньших чем  $40 \text{ ТВт/см}^2$  (при  $\lambda = 1.24 \text{ мкм}$ ), что соответствует флюенсу лазерного излучения  $F = 5.8 \text{ Дж/см}^2$ , и  $10 \text{ ТВт/см}^2$

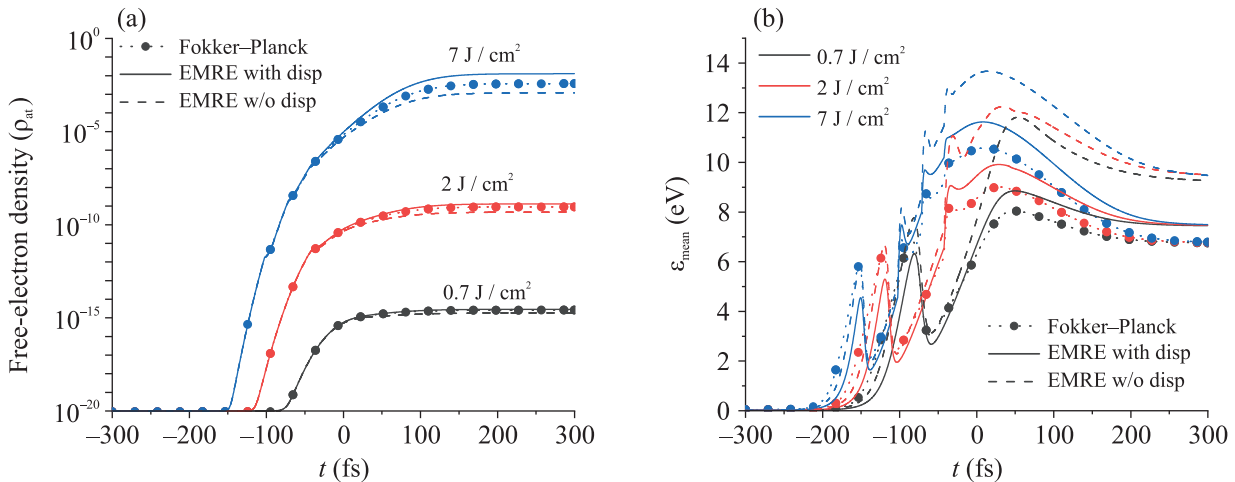


Рис. 3. (Цветной онлайн) Динамика: (a) – полной плотности свободных носителей и (b) – их средней кинетической энергии при разных флюенсах лазерного излучения, рассчитанных по моделям F-Pl, EMRE с учетом и без учета дисперсионного слагаемого. Длина волны  $\lambda = 1.24$  мкм

( $F = 1.3$  Дж/см<sup>2</sup>, при  $\lambda = 4.4$  мкм). Полученные оценки являются немного заниженными, поскольку при увеличении энергии свободных носителей в процессе их разогрева в лазерном поле также увеличивается частота столкновений, которая уменьшает левую часть выражения (8) и смещает область применимости модели F-Pl в сторону больших флюенсов. В силу этого, в данной работе для  $\lambda = 1.24$  мкм использовались флюенсы вплоть до  $F = 8$  Дж/см<sup>2</sup>, а для  $\lambda = 4.4$  мкм – до  $F = 2$  Дж/см<sup>2</sup>.

На рисунке 2 представлена динамика свободных носителей, индуцированных лазерным излучением с длиной волны 1.24 мкм, с использованием модели F-Pl. Плотность распределения носителей по зоне проводимости для различных моментов времени показана на рис. 2а ( $F = 2$  Дж/см<sup>2</sup>). Для более удобного сравнения кривых каждая из них была нормирована на свое максимальное значение. Первоначально узкое распределение вблизи дна зоны проводимости становится шире благодаря фотоионизации, создающей свободные носители с энергией  $\sim 0.51$  эВ (синяя кривая), а также нагреву в лазерном поле индуцированных носителей. По мере прохождения лазерного импульса и увеличения интенсивности поля максимум плотности распределения носителей смещается в область больших энергий. Фотоионизация также создает свободные носители с большей энергией в силу эффективного уширения запрещенной зоны, происходящего из-за осцилляций валентных электронов в лазерном поле. Носители, имеющие энергию больше критической, которая для CaF<sub>2</sub> составляет  $1.5E_g = 18$  эВ, участвуют в ударной ионизации. В результате этого существенно понижается населенность области энергии выше 18 эВ,

но, напротив, увеличивается населенность области 2.1 эВ.

На рисунке 2b показано изменение средней кинетической энергии свободных носителей при прохождении лазерного импульса. При малых флюенсах лазерного излучения ( $F < 0.03$  Дж/см<sup>2</sup>) средняя кинетическая энергия носителей монотонно увеличивается, что свидетельствует о постепенном нагреве носителей в лазерном поле (наибольший рост средней кинетической энергии наблюдается в центре импульса – при наибольшей интенсивности лазерного излучения). Совершенно другая динамика наблюдается при больших флюенсах ( $F > 0.3$  Дж/см<sup>2</sup>). Во-первых, плавный нагрев носителей передним фронтом импульса сменяется падением их средней кинетической энергии, вызванным активным действием ударной ионизации и переносом носителей из высокоэнергетической области ( $> 18$  эВ) в низкоэнергетическую (около 2 эВ).

Причина этого состоит в том, что носители стали в значительной мере концентрироваться в области энергии выше критической (см. плотность распределения при  $t = -100$  фс на рис. 2а). С этого момента времени полная плотность носителей в зоне проводимости нарастает лавинообразно (см. рис. 3а). В центре импульса за счет достигнувшей своего максимального значения интенсивности лазерного излучения средняя кинетическая энергия носителей продолжает увеличиваться. Небольшие скачки, заметные на рис. 2b при  $F = 2$  и 7 Дж/см<sup>2</sup> обусловлены изменением порядка многофотонности процесса фотоионизации вследствие увеличения эффективной ширины запрещенной зоны при росте интенсивности лазерного излучения [22].

На заднем фронте импульса практически не происходит нагрева носителей, однако ударная ионизация продолжает свое действие, снижая среднюю кинетическую энергию носителей до значения  $6.7 \text{ эВ}$ , что составляет  $0.56 E_g$ . Примечательным является тот факт, что вне зависимости от флюенса лазерного излучения, если он превышает определенное значение ( $F > 0.05 \text{ Дж/см}^2$ ), то после прохождения лазерного импульса средняя кинетическая энергия носителей принимает одно и то же значение. Расчеты, проведенные для других длительностей лазерного импульса (в пределах от 80 до 400 фс), другой длины волны (4.4 мкм), а также для модельной среды с вдвое меньшей шириной запрещенной зоны (результаты расчетов не отображены в работе) показывают, что конечное значение средней кинетической энергии остается одним и тем же ( $0.56 E_g$ ). Данный факт свидетельствует о том, что распределение носителей в зоне проводимости после прохождения лазерного импульса имеет один и тот же вид, независимо от параметров лазерного излучения и ширины запрещенной зоны. Ключевым механизмом, формирующим распределение носителей на хвосте лазерного импульса, является ударная ионизация. Наблюдаемая особенность позволяет заключить, что достигается динамический баланс между лазерным нагревом носителей и ударной ионизацией: увеличение скорости лазерного нагрева вследствие роста флюенса лазерного излучения приводит к усилению ударной ионизации, которая формирует точно такое же распределение носителей по зоне проводимости, но лишь с увеличенной полной плотностью носителей.

С практической точки зрения, данный факт указывает на возможность без проведения расчетов динамики свободных носителей заряда, возникающей под действием лазерного импульса, использования эффективной частоты столкновений и эффективной энергии носителей (получаемых при усреднении этих величин по энергетическому распределению носителей) для анализа процессов, следующих за фотовозбуждением носителей: электрон-фононной релаксации, люминесценции.

Применение модели F-P1, например, в задаче распространения лазерного излучения требует огромных вычислительных ресурсов, поскольку необходима достаточная степень дискретизации расчетной сетки энергии носителей. Наиболее простым и логичным способом упростить расчеты является использование скоростных моделей динамики носителей. Ниже представлены результаты с использованием модели EMRE с учетом дисперсионного слагаемого (на рис. 3–5 обозначена как “EMRE with disp”) и без него

(обозначена как “EMRE w/o disp”). Заметим, что, согласно рис. 2а, плотность распределения носителей при энергии выше критической ( $> 18 \text{ эВ}$ ) близка к экспоненциальной, что оправдывает сделанное в модели EMRE предположение о распределении носителей на усредненном уровне (см. формулу (12)).

Динамика полной плотности носителей в зоне проводимости (рис. 3а) демонстрирует небольшое отличие скоростных моделей от более точной модели F-P1: значения отличаются в 1.1 раза при  $F = 0.7 \text{ Дж/см}^2$ , в 1.4 раза при  $F = 2 \text{ Дж/см}^2$  и в 3.1 раза при  $F = 7 \text{ Дж/см}^2$ . Следует отметить, что увеличение точности при учете дисперсионного слагаемого не наблюдается. Однако динамика средней кинетической энергии носителей показывает существенное количественное отличие на заднем фронте импульса (рис. 3б). Использование модели EMRE без дисперсионного слагаемого приводит к отличию в средней кинетической энергии на 2.6 эВ, что составляет около 40%. Учет же дисперсионного слагаемого сокращает это отличие до 0.7 эВ, что составляет всего 11%. В некоторых практических приложениях, например, при определении энергетического порога оптического пробоя, времени релаксации импульса и энергии свободных носителей увеличение точности расчетов энергетического распределения носителей оказывается важным.

Одной из причин наблюдаемых различий в средней кинетической энергии носителей и их полной плотности в зоне проводимости, рассчитанных по модели EMRE и по модели F-P1, является грубость расчетной сетки, используемой в скоростных моделях (шаг сетки равен энергии фотона  $\sim 1 \text{ эВ}$  для длины волны 1.24 мкм). Эти различия можно сократить при уменьшении шага расчетной сетки, т.е. при переходе в более длинноволновую область. Кроме того, динамика носителей под действием лазерного поля среднего инфракрасного диапазона является перспективной и интересной темой для исследований, особенно в свете создания новых перестраиваемых лазерных источников в этом диапазоне [25]. На рисунках 4а и б показана динамика полной плотности свободных носителей и их средней кинетической энергии соответственно. Действительно, отличие в плотности генерируемых свободных носителей сократилось и составляет 1.04 раза при  $F = 0.2 \text{ Дж/см}^2$ , 1.2 раза при  $F = 0.8 \text{ Дж/см}^2$  и 1.6 раза при  $F = 2 \text{ Дж/см}^2$ , а средняя кинетическая энергия носителей после прохождения лазерного импульса принимает те же самые значения, что в случае длины волны 1.24 мкм, как и было отмечено выше. При этом учет дисперсионного слагаемого позволяет заметно снизить отличие

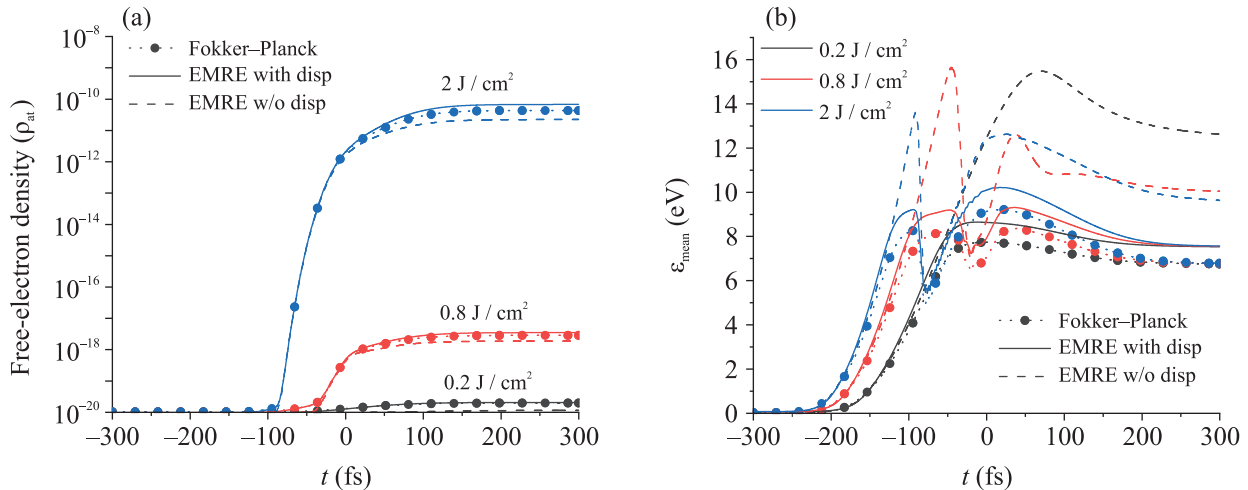


Рис. 4. (Цветной онлайн) Динамика: (а) – полной плотности свободных носителей и (б) – их средней кинетической энергии при разных флюенсах лазерного излучения, рассчитанных по моделям F-Pl, EMRE с учетом и без учета дисперсионного слагаемого. Длина волны  $\lambda = 4.4$  мкм

между EMRE и моделью F-Pl только для динамики средней кинетической энергии носителей.

С точки зрения дальнейшего применения моделей динамики свободных носителей в задаче распространения лазерного излучения через среду, наиболее привлекательной является модель EMRE с добавленным дисперсионным слагаемым. Во-первых, точность расчетов с помощью этой модели позволяет использовать ее взамен статистических моделей (например, F-Pl). Во-вторых, что не менее важно, длительность проводимых с ее помощью расчетов примерно в 20 раз меньше, чем при использовании модели F-Pl (рис. 5). При этом коэффициент ускорения остается практически неизменным во всем диапазоне анализируемых флюенсов лазерного излучения.

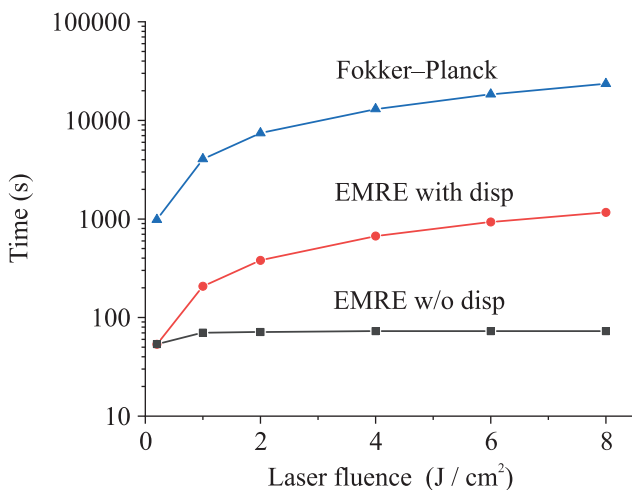


Рис. 5. (Цветной онлайн) Сравнение длительности проводимых расчетов динамики свободных носителей для разных моделей

**Закключение.** В работе проведено исследование динамики свободных носителей в  $\text{CaF}_2$ , индуцированных мощным фемтосекундным лазерным излучением ближнего (1.24 мкм) и среднего (4.4 мкм) инфракрасного диапазонов. Проведено сравнение ранее разработанной модели EMRE с моделью, основанной на уравнении Фоккера–Планка. При флюенсах лазерного излучения, достаточных для активного действия ударной ионизации ( $F > 0.3$  Дж/см<sup>2</sup> для длины волны  $\lambda = 1.24$  мкм и  $F > 0.1$  Дж/см<sup>2</sup> для  $\lambda = 4.4$  мкм) возникает сложная динамика средней кинетической энергии носителей, определяемая скоростью нагрева носителей (пропорциональна интенсивности лазерного излучения) и ударной ионизации (пропорциональна плотности носителей с энергией выше критической). В частности, в центре лазерного импульса, средняя кинетическая энергия носителей может достигать значений порядка  $E_g$ , тогда как после прохождения лазерного импульса средняя кинетическая энергия принимает значение  $0.56E_g$ . Данное значение не зависит от параметров лазерного излучения (флюенса, длины волны в пределах от 1.24 до 4.4 мкм, длительности в пределах от 80 до 400 фс), что свидетельствует о формировании после прохождения импульса независимой от этих параметров формы функции распределения носителей в зоне проводимости. К похожему результату – неизменности формы функции распределения носителей при прохождении лазерного импульса, но в случае, если возникло лавинообразное увеличение плотности носителей – пришли также в работе [16].

Добавление к модели EMRE дисперсионного слагаемого не приводит к существенному уменьшению

расхождения в полной плотности носителей в зоне проводимости, полученных в рамках моделей EMRE и F-P1 (отличие составляет не более чем 3 раза для  $\lambda = 1.24$  мкм и 1.6 раза для  $\lambda = 4.4$  мкм). Однако это дополнительное слагаемое позволяет уменьшить на 30 % (для  $\lambda = 1.24$  мкм) расхождение в средней кинетической энергии. Средняя кинетическая энергия отражает распределение носителей по зоне проводимости, от которого зависит эффективная частота столкновения носителей с частицами (электронами и ионными остовами) и квазичастицами (фононами). Поэтому учет дисперсионного слагаемого важен в таких практических приложениях, как определение энергетического порога оптического пробоя и времени релаксации импульса и энергии свободных носителей.

Применение скоростных моделей (EMRE) вместо более сложных и требующих больших временных ресурсов статистических моделей (F-P1) становится оправдано при решении более масштабной задачи – распространения лазерного излучения через материал. Как показано в данной работе, использование модели EMRE с дисперсионным слагаемым позволяет проводить расчеты в 20 раз быстрее.

Увеличение флюенса лазерного излучения выше тех значений, что представлены в данной работе, будет приводить к истощению валентной зоны и полной однократной ионизации материала. Увеличение длины волны лазерного излучения снижает максимальное значение интенсивности, при котором модель F-P1 применима. В этих режимах (большой флюенс и большая длина волны) применение представленных в данной работе моделей динамики свободных носителей представляется невозможным и требуется решение более общего уравнения Больцмана [13, 14].

Следует подчеркнуть, что в данной работе не брались во внимание любые другие процессы передачи импульса и энергии между частицами и квазичастицами, кроме фотоионизации, нагрева носителей в лазерном поле в результате электрон-электронных и электрон-нейтральных столкновений, а также ударной ионизации. Однако при исследовании механизмов передачи лазерной энергии кристаллической решетке и динамики этих процессов требуется также учет электрон-фононных столкновений и релаксации импульса и энергии свободных носителей вследствие них [16, 21].

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 19-29-12030). К. В. Львов является стипен-

диатом Фонда развития теоретической физики и математики “Базис”.

1. S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, U. B. Szafruga, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 167407 (2011).
2. E. Goulielmakis and T. Brabec, *Nature Photon.* **16**, 411 (2022).
3. V. V. Strelkov, V. T. Platonenko, A. F. Sterzhantov, and M. Yu. Ryabikin, *Phys.-Uspekhi* **59**, 425 (2016).
4. O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S. W. Koch, and R. Huber, *Nature Photon.* **8**, 119 (2014).
5. N. Sanner, O. Utéza, B. Bussiere, G. Coustillier, A. Leray, T. Itina, and M. Sentis, *Appl. Phys. A* **94**, 889 (2009).
6. M. Lenzner, *Int. J. Modern Phys. B* **13**, 1559 (1999).
7. E. I. Mareev, B. V. Rumyantsev, and F. V. Potemkin, *JETP Lett.* **112**, 780 (2020).
8. C. B. Schaffer, A. Brodeur, and E. Mazur, *Meas. Sci. Technol.* **12**, 1784 (2001).
9. S. Yu. Stremoukhov, A. V. Andreev, and O. A. Shoutova, *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* **80**, 500 (2016).
10. S. V. Sazonov and N. V. Ustinov, *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* **84**, 5 (2020).
11. E. Mareev, A. Pushkin, E. Migal, K. Lvov, S. Stremoukhov, and F. Potemkin, *Sci. Rep.* **12**, 7517 (2022).
12. E. M. Gershenson, M. E. Gershenson, G. N. Gol'tsman, A. M. Lyul'kin, A. D. Sernenov, and A. V. Sergeev, *JETP Lett.* **46**, 226 (1987).
13. A. S. Epifanov, A. A. Manenkov, and A. M. Prokhorov, *JETP* **70**, 728 (1976).
14. A. Kaiser, B. Rethfeld, M. Vicanek, and G. Simon, *Phys. Rev. B* **61**, 437 (2000).
15. L. H. Holway, *J. Appl. Phys.* **45**, 677 (1974).
16. B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, *Phys. Rev. B* **53**, 1749 (1996).
17. B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2248 (1995).
18. B. Rethfeld, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 18740 (2004).
19. K. V. Lvov, F. V. Potemkin, and S. Yu. Stremoukhov, *Materials Today Communications* **35**, 105594 (2023).
20. L. V. Keldysh, *JETP* **10**, 509 (1960).
21. N. Medvedev and B. Rethfeld, *J. Appl. Phys.* **108**, 103112 (2010).
22. L. V. Keldysh, *JETP* **47**, 1945 (1964).
23. M. Gryziński, *Phys. Rev.* **138**, A336 (1965).
24. P. Balling and J. Schou, *Rep. Prog. Phys.* **76**, 036502 (2013).
25. E. Migal, A. Pushkin, B. Bravy, V. Gordienko, N. Minaev, A. Sirotkin, and F. Potemkin, *Opt. Lett.* **44**, 2550 (2019).