

НАЧАЛЬНЫЕ СТАДИИ ПЛАВЛЕНИЯ ПОВЕРХНОСТИ GaAs ФЕМТОСЕКУНДНЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ: ИССЛЕДОВАНИЕ МЕТОДОМ ГЕНЕРАЦИИ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ

С.В.Говорков, И.Л.Шумай, В.Рудольф¹⁾, Т.Шредер¹⁾

Экспериментально обнаружено существенное различие характерных времен потери дальнего и ближнего порядка решетки GaAs при воздействии мощных лазерных импульсов длительностью 100 фс.

1. Создание лазеров, излучающих импульсы длительностью менее 100 фс, позволило исследовать в реальном масштабе времени фундаментальные процессы электрон-электронной и электрон-фононной релаксации в фотовозбужденных полупроводниках ¹. Важнейшее значение для диагностики лазерно-индуцированных фазовых переходов имеет применение структурно-чувствительных нелинейно-оптических методов, например, генерации второй гармоники (ГВГ) при отражении. В экспериментах Шенка и др. ^{2,3} было установлено, что исчезновение кристаллического порядка в приповерхностном слое Si при воздействии мощных импульсов длительностью 90 фс происходит не позднее, чем через 1 пс после возбуждения. Каш и др. ⁴ методом спонтанного комбинационного рассеяния с временным разрешением установили, что полное время передачи энергии от возбужденных носителей к решетке в GaAs составляет около 2 пс. Позднее Том и др. ⁵ провели исследование динамики плавления поверхности Si методом ГВГ и обнаружили, что кристаллическая решетка теряет дальний порядок за ~ 150 фс, что дало основания для обсуждения возможности "холодного" плавления решетки ⁶.

2. Мы сообщаем о результатах исследования начальной стадии плавления поверхности GaAs под действием лазерных импульсов длительностью 100 фс методом ГВГ и линейного отражения. В отличие от линейного отражения эффективность ГВГ зависит от симметрии кристаллической решетки в приповерхностном слое, и согласно правилам отбора должна падать в GaAs по мере потери дальнего порядка. Нами обнаружено, что спад интенсивности ВГ

¹⁾ Университет им. Ф.Шиллера, Йена, ГДР.

происходит с характерным временем около 100 фс, в то время как коэффициент линейного отражения возрастает до значения, характерного для расплавленного GaAs, существенно медленнее — с постоянной времени 1 пс. Эти данные позволяют утверждать, что дальний порядок кристаллической структуры теряется за времена, когда решетка остается еще относительно холодной.

3. Мы использовали лазерную систему, генерирующую спектрально-ограниченные импульсы длительностью 100 фс по полувысоте и энергией до 0,1 мДж на длине волны 620 нм, состоящую из кольцевого лазера на красителе с пассивной синхронизацией мод и четырехкаскадного усилителя на красителях, накачиваемого ХеСl-лазером⁷. Уровень спонтанного излучения усилителя не превышал 1% от энергии импульсов. Излучение (1) разделялось на две части (соотношение энергий 10 : 1) диэлектрическим зеркалом (2) (см. рис. 1). Более сильный возбуждающий пучок направлялся на поверхность монокристалла GaAs(110) (3) под углом 10^0 к нормали и фокусировался в пятно диаметром 150 мкм. Слабый пробный импульс после задержки (4) фокусировался в пятно в центре пучка накачки, в два раза меньше по диаметру. Суммарная плотность энергии излучения на поверхности составляла около $0,15 \text{ Дж/см}^2$, что примерно в три раза выше порога аморфизации приповерхностного слоя. Излучение второй гармоники пробного импульса отделялось диафрагмой, диэлектрическим зеркалом (5), фильтрами (6) и регистрировалось фотоумножителем (7). Часть энергии отраженного пробного пучка отводилась на фотодиод (8) для измерения коэффициента линейного отражения. После каждой лазерной вспышки (частота следования 1 Гц) образец перемещался параллельно плоскости среза, что позволило избежать эффекты накопления.

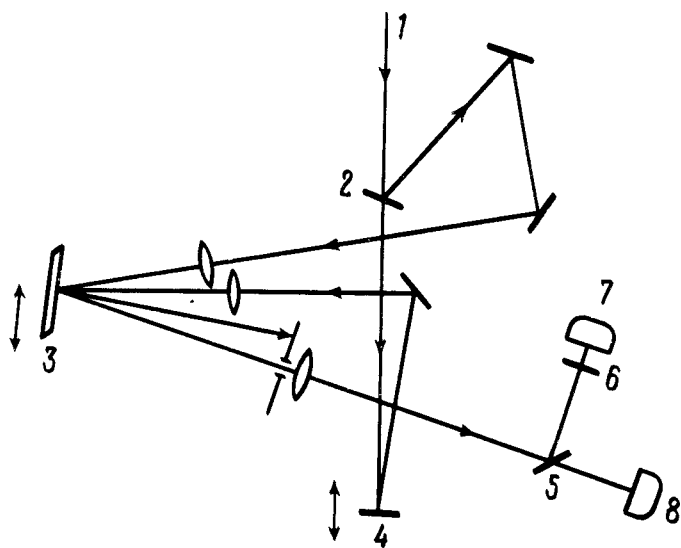


Рис. 1. Схема лучей в эксперименте

4. Измерялась разность интенсивностей отраженной второй гармоники $\Delta I_{\text{вг}}$ и линейно отраженного пробного пучка ΔI_R при действии возбуждающего пучка и без него при различных значениях задержки τ пробного импульса относительно возбуждающего. Полученные зависимости приведены на рис. 2. Как видно, уже в течение действия импульса накачки происходит резкий спад интенсивности ВГ на 70%. Интенсивность линейно отраженного излучения нарастает медленнее, и при больших задержках (более 10 пс) достигает значения, характерного для расплавленного GaAs. Особенностью зависимости $\Delta I_R(\tau)$ является резкий пик

при $\tau = 0$, практически совпадающий по времени с кросс-корреляционной функцией импульсов накачки и зондирования. Причиной его появления является, по-видимому, когерентное взаимодействие импульсов, приводящее к дополнительному рассеянию импульса накачки в направлении отраженного пробного пучка. Кроме того, нельзя исключать возможность проявления эффекта "заполнения состояний" в зоне проводимости и в валентной зоне с разностью энергий, близкой к энергии кванта лазерного излучения⁸. Время релаксации заполненных состояний не превышает 100 фс, поэтому данный эффект проявляется лишь во время действия мощного импульса. Этим, по-видимому, объясняется отрицательный выброс на зависимости $\Delta I_{\text{ВГ}}(\tau)$ длительностью около 200 фс.

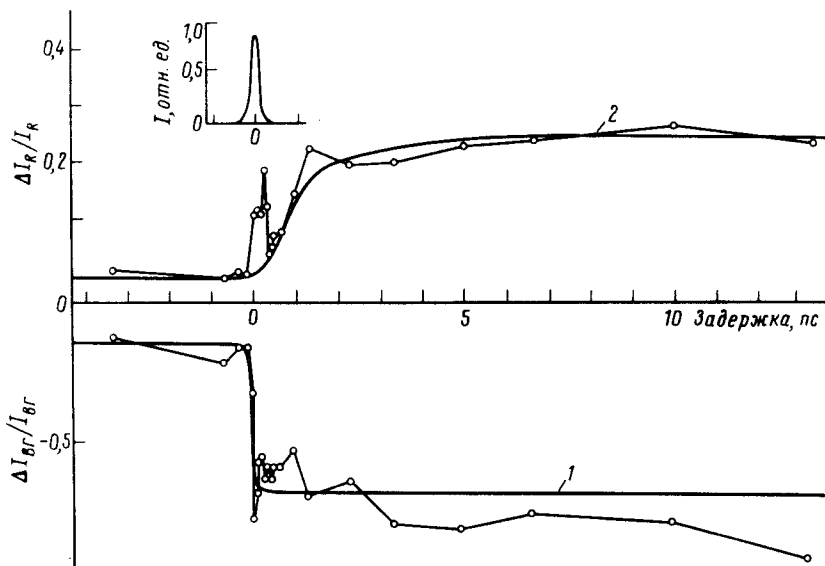


Рис. 2. Зависимость изменения интенсивности ВГ (кривая 1) и линейно отраженного пробного пучка (кривая 2) от задержки пробного импульса относительно возбуждающего. Величины изменения нормированы на значение интенсивности в отсутствие возбуждающего импульса. Точки – эксперимент; гладкие кривые – теория при $\tau_R = 1$ пс и $\tau_{\text{ВГ}} = 100$ фс. На врезке – временная кросс-корреляционная функция пробного и возбуждающего импульсов

5. Постоянные времени изменения $\Delta I_{\text{ВГ}}(\tau)$ и $\Delta I_R(\tau)$ определялись путем аппроксимации экспериментальных зависимостей по формулам

$$\Delta I_{\text{ВГ}}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} I^2(t - \tau) \chi^{(2)}(t) dt, \quad (1)$$

$$\Delta I_R(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} I(t - \tau) R(t) dt, \quad (2)$$

где $I(t)$ – интенсивность пробного импульса (принималась Гауссова зависимость от времени). Зависимость изменения нелинейной восприимчивости второго порядка $\Delta \chi^{(2)}$ и коэффициента линейного отражения ΔR от времени брались в виде

$$\Delta \chi^{(2)}(t) = \begin{cases} 0, & \text{если } t \leq t_0 \\ \Delta \chi_0^{(2)} (\exp(-(t - t_0)/\tau_{\text{ВГ}}) - 1), & \text{если } t > t_0, \end{cases} \quad (3)$$

$$\Delta R(t) = \begin{cases} 0, & \text{если } t \leq t_0 \\ \Delta R(-\exp(-(t-t_0)/\tau_R) + 1), & \text{если } t > t_0, \end{cases} \quad (4)$$

где t_0 — момент начала фазового перехода, $\tau_{\text{ВГ}}$ и τ_R — характерные времена изменения $I_{\text{ВГ}}$ и I_R . Как видно из рис. 2, удовлетворительное согласие с экспериментом достигается при $\tau_R = 1$ пс и $\tau_{\text{ВГ}} = 100$ фс. На рис. 3 представлен в более крупном временном масштабе спад интенсивности ВГ в течение импульса накачки и теоретические зависимости при $\tau_{\text{ВГ}} = 25$ фс, 100 фс, 150 фс, откуда видно, что $\tau_{\text{ВГ}} = 100$ фс является верхней оценкой времени разупорядочения кристаллической решетки. Влияние неколлинеарности пучков накачки и зондирования на временное разрешение было малым из-за малости угла между ними.

6. Таким образом, результаты эксперимента показывают, что потеря решеткой дальнего порядка, проявляющаяся в падении интенсивности второй гармоники, происходит значительно быстрее, чем изменение линейных оптических свойств GaAs, отражающих состояние ближнего порядка. Характерное время $\tau_{\text{ВГ}} = 100$ фс оказывается меньшим, чем время передачи энергии от электронной подсистемы к решетке⁴, в то время как характерное время нарастания R по порядку величины близко к этому значению и, таким образом, согласуется с предположением о тепловом плавлении. Эти результаты позволяют предположить наличие короткоживущей промежуточной неравновесной фазы кристалла с нарушенным дальним порядком, предшествующей плавлению и существующей при относительно "холодной" решетке⁵.

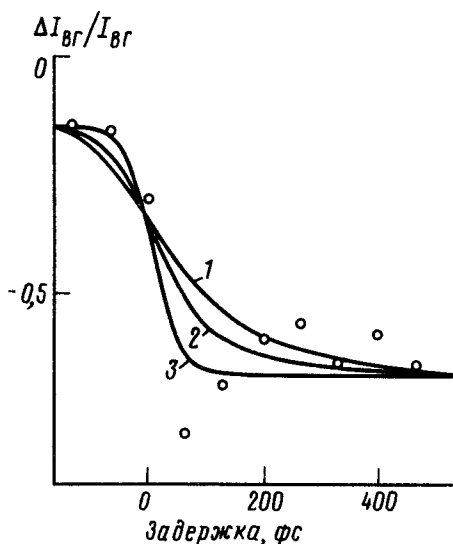


Рис. 3. Спад интенсивности ВГ в окрестности $\tau = 0$. Точки — эксперимент, гладкие кривые — теория при $\tau_{\text{ВГ}} = 150$ фс (кривая 1), $\tau_{\text{ВГ}} = 100$ фс (2), $\tau_{\text{ВГ}} = 25$ фс (3)

Литература

1. Laser Optics of Condensed Matter, ed Birman J.L., Cummins H.Z., Kaplyanskii A.A. Plenum Press, N.-Y.—London, 1988.
2. Shank C.V., Yen R., Hirlimann C. Phys. Rev. Lett., 1983, 50, 454.
3. Shank C.V., Yen R., Hirlimann C. Phys. Rev. Lett., 1983, 51, 900.
4. Kash J.A., Tsang J.C., Hvam J.M. Phys. Rev. Lett., 1985, 54, 2151.
5. Tom H.W.K., Aumiller G.D., Brito-Cruz C.H. Phys. Rev. Lett., 1988, 60, 1438.
6. Van Vechten I. J. de Phys., 1983, 44, suppl. № 10, C5, 11.
7. Diotel W. et al. Appl. Phys. B, 1988, B46, 183.
8. Oudar J.L. et al. Phys. Rev. Lett., 1985, 55, 2074.