# Исследование динамики неравновесных решеток, индуцированных фемтосекундными лазерными импульсами в пленках кремния

© С.Ф. Галяутдинов<sup>¶</sup>, В.С. Лобков, С.А. Моисеев, И.В. Неграшов

Физико-технический институт Казанского научного центра Российской академии наук, 420029 Казань, Россия

(Получена 5 марта 2001 г. Принята к печати 26 апреля 2001 г.)

Проведено исследование кинетики распада динамической решетки, образованной неравновесными носителями заряда в тонких монокристаллических пленках кремния при фемтосекундном лазерном возбуждении. Проанализирован случай предельной концентрации носителей заряда ( $N \approx 10^{21} \text{ см}^{-3}$ ). Произведена оценка вкладов амбиполярной диффузии и оже-рекомбинации в распаде динамической решетки. При интенсивностях накачки (возбуждения) выше 5 ·  $10^{11}$  BT/см<sup>2</sup> обнаружен эффект долгоживущей динамической решетки.

#### Введение

В настоящее время вызывает большой интерес динамика свободных носителей заряда в полупроводниках, генерируемых пико- и фемтосекундными лазерными импульсами. Этот интерес обусловлен образованием в полупроводнике сильно неравновесных состояний электронной и фононной подсистем. При использовании фемтосекундных лазерных импульсов с пиковой интенсивностью  $I \approx 10^{11} \, {\rm Br}/{\rm cm}^2$  возможна генерация сильно перегретой электронно-дырочной плазмы с концентрацией носителей  $N \approx 10^{21} \, {\rm cm}^{-3}$  [1–3]. Распад подобных неравновесных состояний происходит в течение времени  $t_p = 10^{-12} - 10^{-14}$  с и обусловлен влиянием нескольких конкурирующих механизмов [1-7]. Цель настоящей работы заключается в оценке степени влияния основных механизмов распада электронно-дырочной плазмы в монокристаллических пленках Si на процесс в целом.

#### Методика эксперимента

Эксперимент проводился по методике дифракции пробного луча на наведенной в образце динамической решетке [4,5,8].

В экспериментах использовался кольцевой фемтосекундный лазер на красителях с пассивной синхронизацией мод фирмы Avesta LTD, выполненный по схеме CPM ("colliding-pulse mode-locked"), накачиваемый всеми линиями аргонового лазера ЛГН-512. Получаемые импульсы усиливались в двух шестипроходных каскадах усиления на красителе FN-70, накачиваемых лазером на парах меди. Получаемые в итоге импульсы были спектрально ограничены и имели следующие параметры: длительность 80 фс, частота следования 10 кГц, энергия в импульсе 2-4 мкДж, длина волны максимума спектра 615 нм, поляризация излучения — горизонтальная. Световой пучок после усиления направлялся на светоделитель и делился на две части в соотношении 30/70. Меньшая часть направлялась на управляемую компьютером оптическую линию задержки и из нее формировался зондирующий пучок  $I_{np}$  (рис. 1), другая часть в свою очередь снова делилась светоделителем на две равные части, из которых формировались возбуждающие пучки  $I_1$  и  $I_2$ . Один из возбуждающих пучков проходил через свою собственную оптическую линию задержки, которая служила для компенсации разности хода, возникающей при делении этих пучков. Два возбуждающих пучка, пройдя через фокусирующую линзу, пересекались на образце под углом  $\theta$  и интерферировали между собой, в результате чего на образце, в области порядка 100 мкм, формировалась интерференционная картина, описываемая выражением

$$I(x,t) = I_0(t)[1 + V\cos(2\pi x/\Lambda)],$$
 (1)

где I(x, t) — интенсивность света, x — расстояние вдоль направления, перпендикулярного биссектрисе между направлениями  $I_1$ ,  $I_2$ , V — глубина модуляции,  $\lambda$  — длина волны света,  $\Lambda = \lambda/2 \sin(\theta/2)$  — период решетки.

Интенсивность дифракции пробного пучка на этой решетке измерялась с помощью ФЭУ в режиме счета фотонов (R4220, Hamamatsu) и регистрировалась компьютером.

В качестве образца использовался чистый кремний ( $\rho = 10 \, \text{Om} \cdot \text{сm}$ ). Поскольку в кремнии существует силь-



Рис. 1. Схема формирования динамической решетки.

<sup>¶</sup> E-mail: Mansur@kfti.knc.ru

ное поглощение на длине волны лазера ( $\alpha = 4 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ при  $\lambda = 615 \text{ нм}$ ), толщина образцов выбиралась исходя из того, чтобы оптическая плотность *D* образцов была близка к 1. В нашем случае толщина образца составляла 10 мкм, а оптическая плотность  $D \approx 1.1$ .

Возникновение дифракционной решетки обусловлено светоиндуцированным изменением показателя преломления ( $\Delta n$ ) в пучностях интерференционной картины. Согласно классической модели Друде [5], для Si  $\Delta n = 9 \cdot 10^{-22} \cdot N$  для  $\lambda = 1.06$  мкм, где N — концентрация неравновесных свободных носителей заряда. В соответствии с этим глубина фазовой модуляции в исследуемых нами образцах должна зависеть от толщины и уровня возбуждения. Дифракционную эффективность в 1-й порядок дифракции  $F_{3\phi\phi}$  для толщины образца, не превышающий глубины скин-слоя, в случае синусоидальной фазовой решетки можно оценить по известной формуле [4]

$$F_{
m s\phi\phi} \propto J_1(g),$$
 (2)

где  $J_1(g)$  — функция Бесселя 1-го рода,  $g = \pi N \Delta n_{\rm eh} d/\lambda$  — аргумент функции Бесселя,  $\Delta n_{\rm eh}$  — изменение показателя преломления на одну электронно-дырочную пару, d — толщина образца.

Типичное достижимое значение концентрации неравновесных носителей заряда в кремнии при наносекундном и пикосекундном фотовозбуждении составляет  $N = 10^{18} - 10^{19} \,\mathrm{cm^{-3}}$  [4–6]. Проведенные нами оценки для таких концентраций по формуле (2) дают величину  $F_{3\phi\phi} \approx 5 \cdot 10^{-3} - 5 \cdot 10^{-5}$  для пленок Si с толщиной  $d \approx 10$  мкм. При такой величине  $F_{3\phi\phi}$  дифракция уверенно наблюдается в эксперименте.

При релаксации таких структур действуют несколько конкурирующих механизмов, основными из которых являются амбиполярная диффузия и оже-рекомбинация неравновесных носителей заряда [4]. Для исследования особенностей кинетики этой релаксации изменялся период интерференционной картины  $\Lambda$  путем изменения угла  $\theta$  между пучками  $I_1$  и  $I_2$  (рис. 1). В этом случае изменяется вклад амбиполярной диффузии, что позволяет оценить степень ее влияния на процесс релаксации. Образец находился при комнатной температуре. В процессе экспериментов контролировалось отсутствие необратимых изменений в образце.

#### Результаты и обсуждение

Полученные нормированные зависимости дифракционной эффективности от задержки пробного импульса относительно возбуждающих импульсов для трех различных периодов интерференционной картины приведены на рис. 2. Значения угла между лучами  $\theta$ , периода решетки  $\Lambda$  и постоянной времени распада решетки  $t_p$ приведены в таблице.

При малых периодах решетки  $\Lambda$  полученные экспериментальные результаты удовлетворительно объясняются



**Рис. 2.** Дифракционная эффективность динамической решетки в зависимости от задержки пробного пучка относительно возбуждающих импульсов для трех периодов интерференции.

диффузионным механизмом в соответствии с уравнением (3) в предположении электронейтральности среды  $(N_e \approx N_h \approx N)$ :

$$d/dt \cdot N = D_{\mathrm{ди}\phi\phi} \cdot d^2/dx^2 \cdot N, \qquad (3)$$

где  $D_{\text{дифф}}$  — коэффициент амбиполярной диффузии. Согласно этой модели, время распада решетки определяется выражением

$$\Lambda = 2\pi \sqrt{D_{\text{диф}\phi} \cdot t_{\text{p}}}.$$
(4)

По формуле (4) были рассчитаны коэффициенты диффузии свободных носителей заряда при  $\Lambda = 0.64$  мкм. Полученное значение  $D_{\text{диф}\phi} \approx 14 \text{ см}^2/\text{с}$  удовлетворительно согласуется с литературными данными  $(D_{\text{диф}\phi} \approx 10 \text{ см}^2/\text{с} [4,5]).$ 

С увеличением шага решетки скорость ее распада уменьшается, однако не в такой степени, как это следовало бы из уравнения (3). Можно сделать вывод, что в случае зависимостей 2 и 3 на рис. 2 распад решетки происходит не только за счет диффузии, но и за счет рекомбинации свободных носителй заряда. При наличии больших концентраций N целесообразно оценить влияние оже-рекомбинации на скорость распада решетки. Кинетика релаксации решетки электроннодырочной плазмы в условиях электронейтральности благодаря диффузии и оже-рекомбинации описывается следующим уравнением [5]:

$$d/dt \cdot N = D_{\mu\phi\phi} \cdot d^2/dx^2 \cdot N - \gamma N^3, \tag{5}$$

где  $\gamma$  — коэффициент оже-рекомбинации.

№ периода	heta, град	$\Lambda$ , мкм	$t_{\rm p}, \ 10^{-12}  {\rm c}$
1	57	0.64	14
2	14	2.63	71
3	7	5.26	172



**Рис. 3.** Дифракционная эффективность динамической решетки с малым периодом в зависимости от задержки пробного пучка относительно возбуждающих импульсов при  $I \approx 5 \cdot 10^{11} \text{ Br/cm}^2$ .

Для больших периодов  $\Lambda$  существует простая асимптотика поведения N(t):

$$N(t) \approx \frac{N(t=0)}{\sqrt{1+2t\gamma(N(t=0))^2}}.$$
 (6)

Используя (2) и (6), можно получить следующую оценку времени распада решетки  $t_p$  только за счет ожерекомбинации при больших периодах решетки  $\Lambda$ :

$$t_{\rm p} = (2\gamma (N(t=0))^2)^{-1}.$$
 (7)

Для  $N(t = 0) = 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ,  $\gamma \approx 4 \cdot 10^{-31} \text{ см}^6/\text{с}$  [7] получаем  $t_{\rm p} \approx 100 \text{ пс}$ , что близко к наблюдаемому нами поведению сигнала дифракции (рис. 2, кривая 3).

Нами была также обнаружена дополнительная особенность в распаде, которая наблюдалась при плотности возбуждающей мощности, превышающей  $10^{11}$  BT/см<sup>2</sup>. В этом случае наблюдалась задержка распада решетки с малым периодом ( $\Lambda \approx 0.64$  мкм), проявившаяся в виде образования плато протяженностью  $\approx 12$  пс (рис. 3). Мы полагаем, что это обусловлено металлизацией поверхности полупроводника, вызванной образованием электронно-дырочной плазмы с концентрацией  $N > 10^{21}$  см<sup>-3</sup>, детально проанализированной в работах Копаева [9].

Таким образом, изучение дифракции на наведенных светом динамических структурах в тонких пленках полупроводников позволяет изучать процессы, происходящие в сильно неравновесной электронно-дырочной плазме. Мы надеемся, что дополнительные эксперименты позволят лучше понять рассмотренные выше механизмы релаксации, и в том числе образование и свойства металлизированного состояния в полупроводнике.

Работа была поддержана грантами РФФИ № 00-15-96615 и № 00-15-97410.

### Список литературы

- Н.И. Коротеев, И.Л. Шумай. Физика мощного лазерного излучения (М., Наука, 1991).
- [2] C.V. Sank, R. Yen, C. Hirlimam. Phys. Rev. Lett., 51, 900 (1983).
- [3] A. Tom, G. Aumiller, C. Brito-Cruz. Phys. Rev. Lett., 64, 1438 (1988).
- [4] С.Г. Одулов, И.И. Пешко, М.С. Соскин, А.И. Хижняк. УФЖ, 21 (11), 1869 (1976).
- [5] J.P. Woerdman. Opt. Commun., 2 (5), 212 (1970).
- [6] А.М. Бонч-Бруевич, В.А. Ковалев, Г.С. Романов, Я.А. Имас, М.Н. Либенсон. ЖТФ, 38 (4), 677 (1968).
- 7] В.А. Абакумов, И.Н. Яссиевич. ФТП, 11 (8), 1302 (1972).
- [8] В.С. Лобков, С.А. Моисеев, Е.А. Штырков. Опт. и спектр., 64 (1), 79 (1988).
- [9] Ю.В. Копаев, В.В. Меняйленко, С.Н. Молотков. ЖЭТФ, 89 (4), 1404 (1985); Микроэлектроника, 14 (2), 153 (1985).

Редактор Л.В. Беляков

## Femtosecond time-resolved study of dynamic laser-induced nonequilibrium grating in Si films

M.F. Galyautdinov, V.S. Lobkov, S.A. Moiseev, I.V. Negrashov

Kazan Physical-technical Institute of the Kazan Scientific Center of the Russian Academy of Sciences, 420029 Kazan, Russia

**Abstract** Kinetics of the decay of a dynamical grating formed by nonequilibrium charge carries in thin monocrystalline silicon films under femtosecond laser excitation are studied. A case of limiting concentration of charge carriers ( $N \approx 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ) is analyzed. Contributions of ambipolar diffusion and Auger-recombination in the decay of a dynamical grating are estimated. At high intensities (>  $5 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ) an effect of th long-lived (12 ps) dynamical grating is discovered.

1430