

Моделирование поглощения фемтосекундного лазерного импульса кристаллическим кремнием

© И.В. Гук, Г.А. Марциновский, Г.Д. Шандыбина[†], Е.Б. Яковлев

Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, 197101 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 27 декабря 2012 г. Принята к печати 4 апреля 2013 г.)

Исследовано влияние нелинейности поглощательной способности и коэффициента поглощения на процесс интенсивного фотовозбуждения кремния на основе модели двухфотонного возбуждения полупроводника с учетом внешней эмиссии. Сравнение результатов моделирования поглощения фемтосекундного лазерного импульса монокристаллическим кремнием с экспериментальными данными по условиям фемтосекундного возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов позволило уточнить механизм изменения поглощательной способности и необходимость учета этого изменения при оценке режимов лазерной обработки полупроводников. Обсуждаются пути дальнейшего совершенствования теоретической модели.

1. Введение

Взаимодействие фемтосекундных лазерных импульсов с твердым телом вызывает неослабевающий интерес благодаря уникальности реализующихся при этом взаимодействия физических условий. Также наблюдаемые в результате фемтосекундного воздействия эффекты находят множество применений в различных технологиях обработки материалов [1–4].

Из-за трудностей экспериментального исследования динамики быстропротекающих процессов роль математического моделирования становится очень важной. При построении соответствующих моделей необходимо уделять особое внимание описанию оптических свойств твердого тела, которые существенно изменяются во время ультракороткого лазерного импульса. К таким оптическим свойствам относятся коэффициент поглощения, который определяет глубину проникновения света в материал, и поглощательная способность (ПС), определяющая интегральное выделение световой энергии в среде. Исследования особенностей взаимодействия ультракоротких лазерных импульсов с различными средами показали, что существенное изменение оптических свойств твердого тела во время ультракороткого лазерного импульса обусловлено процессами, развивающимися в электронной подсистеме. В большинстве моделей, описывающих процесс интенсивного фотовозбуждения и нагрева полупроводников, рассматривается изменение глубины слоя, в котором поглощается излучение [5,6], и не учитывается динамика поглощательной способности. Впервые о необходимости учета изменения поглощательной способности при воздействии ультракоротких лазерных импульсов на металл было сказано в работе [7].

При переходе от металлов к полупроводникам численные модели, описывающие электронные процессы в сильно возбужденном полупроводнике, существенно усложняются. Так, в работе [6] использовалась математическая модель двухфотонного фотовозбуждения

кремния, в которой уравнения теплопроводности дополнены уравнением концентрации неравновесных носителей $n(z, t)$ и граничными условиями для потоков двухфотонной фотоэмиссии и термоэмиссии. В процессе фотовозбуждения с ростом концентрации электронно-дырочной плазмы изменялся коэффициент поглощения $\alpha(z, t)$, представляющий собой сумму коэффициента двухфотонного поглощения внутреннего фотоэффекта, коэффициента поглощения на свободных электронах и коэффициента двухфотонного поглощения внешнего фотоэффекта. Предполагалось, что поглощательная способность полупроводника $A = 1 - R$ является величиной постоянной.

Развивая рассмотренные в [6] модельные представления, в данной работе предполагается учесть динамику изменения поглощательной способности и определить ее вклад в общую картину электронных процессов фемтосекундного взаимодействия лазерного излучения с кремнием. Полученные результаты обсуждаются в соответствии с представлениями о поляритонном механизме фемтосекундного микроструктурирования поверхности.

2. Поглощательная способность в приближении слабоаномального высокочастотного скин-эффекта

В результате многочисленных предыдущих исследований сверхбыстрой электронной динамики в полупроводниках установлено образование плотной (более 10^{21} см^{-3}) электронно-дырочной плазмы, поэтому для анализа роли поглощательной способности можно применить классическую теорию скин-эффекта. Согласно этой теории, на величину поглощательной способности металлов влияет в первую очередь степень локальности отклика электронов проводимости в поле электромагнитной волны, а также различают частотную зависимость ПС A_ω , зависимость ПС от температуры A_T (которая в области длинных лазерных импульсов обусловлена увеличением частоты электрон-фононных

[†] E-mail: shandyb@lastech.ifmo.ru

столкновений и $A_T \propto T$) и рассеяние электронов на поверхности A_S :

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

При облучении полупроводника ультракороткими лазерными импульсами изменяется механизм поглощательной способности: растущая концентрация электронов увеличивает частоту плазменных колебаний и частоту электронных столкновений; времена электрон-фононных столкновений становятся больше длительности импульса и на ПС начинает влиять частота электрон-электронных столкновений и соответственно рост температуры электронного газа, а поверхностное поглощение реализуется в условиях сильных эмиссионных потоков электронов с поверхности.

Для проведения качественного анализа вклада частотной, поверхностной и температурной компонент в изменение ПС кремния при фемтосекундном лазерном воздействии воспользуемся приближением слабоаномального высокочастотного скин-эффекта [8,9], $\gamma < \omega < \omega_p$, где $\gamma \approx \gamma_e$ — частота столкновений электронов, определяемая частотой электрон-электронных столкновений, ω_p — плазменная частота. Используя выражения (2)–(3) для плазменной частоты электронов, частоты электрон-электронных столкновений, скорости (v_F) и энергии Ферми (ϵ_F), можно получить выражения, отражающие изменение поглощательной способности во времени (4)–(5).

$$\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi n q_e^2}{m_e}},$$

$$\gamma_e = \frac{9\omega_p^4}{64\pi^2 m v_F^3} \left[\left(\frac{\hbar\omega}{2\pi\epsilon_F} \right)^2 + \left(\frac{k_B T_e}{\epsilon_F} \right)^2 \right], \quad (2)$$

$$v_F^2 = 2\epsilon_F/m_e, \quad \epsilon_F = \frac{\hbar^2}{2m_e} (3\pi^2 n)^{2/3}, \quad (3)$$

где m_e — эффективная масса, примерно равная массе свободного электрона; q_e — заряд электрона; частота лазерного излучения $\omega = 1.5 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$; k_B — постоянная Больцмана; $n = n(z, t)$ — концентрация электронов.

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

где

$$\eta(t) = \frac{q_e^3 m_e^{7/2}}{\hbar^7 \pi^{19/6} 3^{1/3} \int_0^\infty n^{11/6}(z, t) dz}. \quad (5)$$

В выражении (4) 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 глубь материала: p — феноменологический параметр, $0 < p < 1$; c_0 — скорость света.

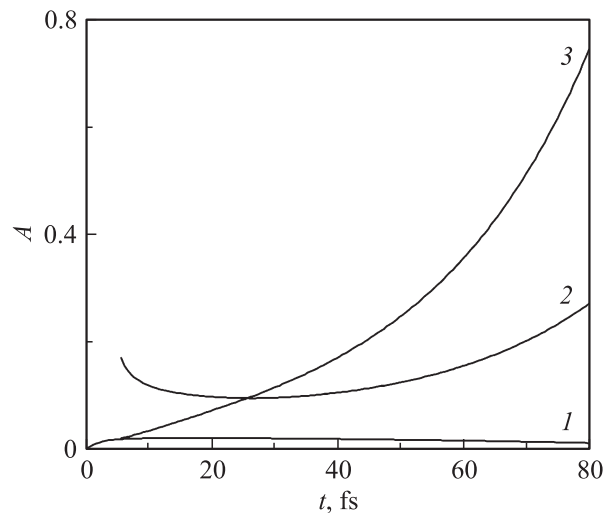


Рис. 1. Изменение поверхностной (линия 1), частотной (линия 2), температурной (линия 3) компонент ПС кремния во время действия лазерного импульса.

Численное моделирование выполняется для монокристаллического кремния, пластины толщиной 300 мкм. Численные расчеты выполняются с применением разностных методов для уравнений в частных производных. Лазерные импульсы длительностью 80 фс, длина волны излучения 1.25 мкм, плотность энергии линейно поляризованного излучения 0.5–1 Дж/см². В качестве объекта используются пластины монокристаллического кремния толщиной 300 мкм ($A = 0.2$). Результаты численного счета представлены на рис. 1, где на фоне профиля лазерного импульса показана динамика каждого из компонент ПС.

Видно, что диффузное рассеяние электронов от границы поверхности в глубь полупроводника дает слабый вклад в общую ПС (рис. 1, линия 1), но может влиять на поглощение в начале импульса, частотная компонента также изменяется слабо (рис. 1, линия 2), и только температурная компонента ПС стремительно возрастает (рис. 1, линия 3). 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.

Пространственно-временное распределение концентрации электронно-дырочной плазмы для куполообразной формы лазерного импульса при постоянной поглощательной способности ($A = 0.2$) и с учетом зависимости ПС от температуры электронного газа (4)–(5) показано на рис. 2. Видно, что уже в первые фемтосекунды

лазерного импульса (см. вставку на рис. 2, *a*) происходит металлизация полупроводника; максимум концентрации возбужденных носителей ввиду эмиссионных явлений на поверхности загибается — в приповерхностном слое образуется оптически неоднородная структура. Во второй половине импульса концентрация возбужденных носителей падает, отслеживая временное распределение

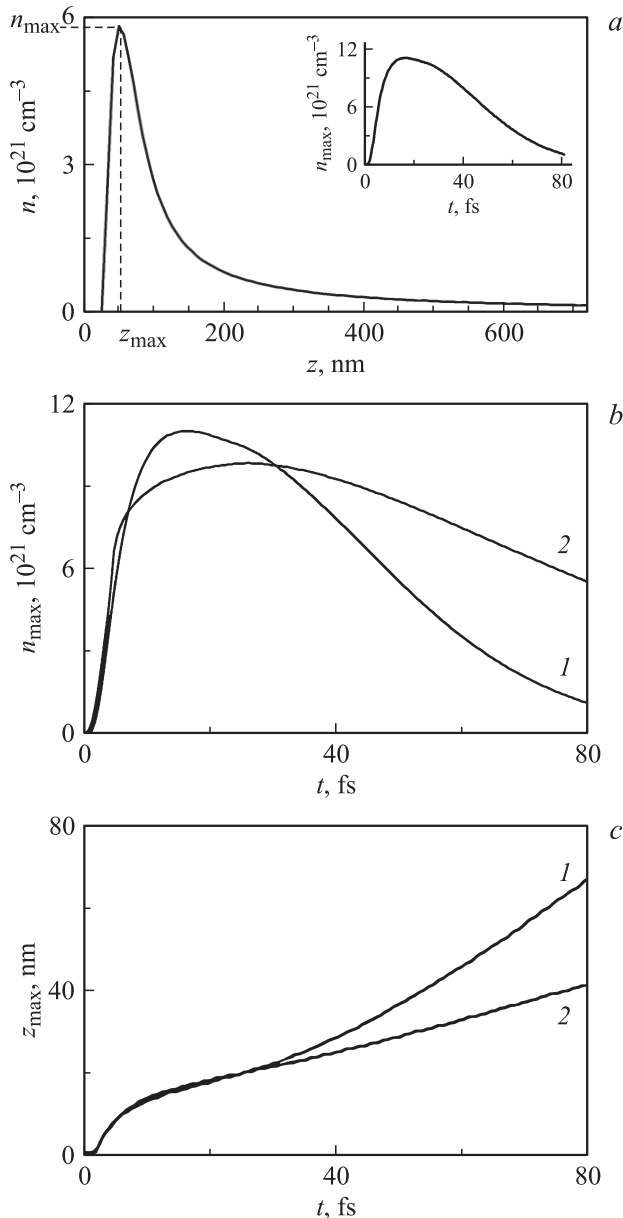


Рис. 2. Распределение концентрации возбужденных носителей в кремнии: *a* — в глубину в момент времени $t = 50$ фс при постоянной ПС (вставка — динамика распределения максимального значения концентрации); *b* — в зависимости от времени (в максимуме по глубине); *c* — динамика движения координаты максимума z_{\max} концентрации. На рис. *b* и *c* линия 1 — для постоянной ПС, линия 2 — для изменяющейся ПС.

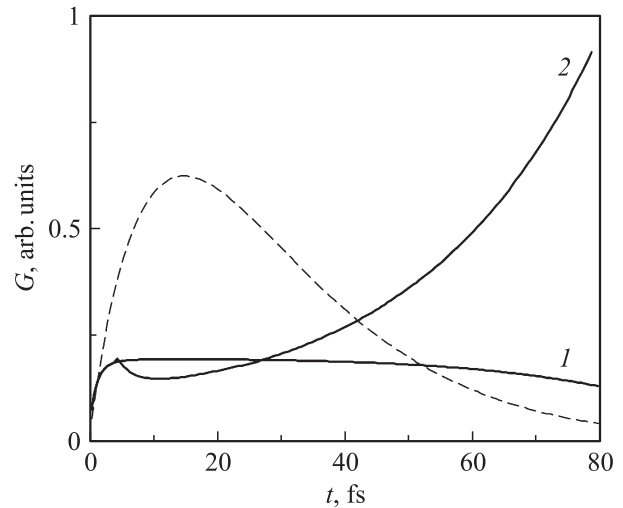


Рис. 3. Динамика поглощенного потока лазерного излучения (в отн. ед.) при постоянной ПС $A = 0.2$ (линия 1) и при изменяющейся ПС (линия 2). Пунктирной линией показана временная форма лазерного импульса; $Q = 1$ Дж/см².

лазерного импульса. Глубина залегания максимума концентрации порядка 50 нм (рис. 2, *a*).

Учет динамики поглощательной способности существенно изменяет кинетику концентрации носителей (рис. 2, *b*). Значение концентрации в течение всего лазерного импульса превышает значение $5 \cdot 10^{21}$ см⁻³ (при котором, согласно оценкам по модели Друде, для $\lambda = 1.25$ мкм знак диэлектрической проницаемости в кремнии становится отрицательным) и полупроводник остается в металлизированном состоянии практически весь импульс. Максимум концентрации неравновесных носителей сдвигается ближе к поверхности (рис. 2, *c*).

Для лазерной обработки полупроводников важной характеристикой нагрева является удельный поглощенный поток $\alpha(z, t)q(z, t)$, представляющий собой произведение коэффициента поглощения $\alpha(z, t)$ и поглощенного потока $q(z, t)$. В этой характеристике аккумулированы изменения обеих оптических характеристик полупроводника: коэффициента поглощения и поглощательной способности. В относительных единицах удельный поглощенный поток можно представить как отношение проинтегрированного по глубине удельного поглощенного потока к падающему потоку лазерного излучения:

$$G(t) = \frac{\int_0^{\infty} \alpha(z, t)q(z, t)dz}{q_0(t)}. \quad (6)$$

На рис. 3 представлена динамика удельного поглощенного потока (6) при постоянной и изменяющейся ПС. Рост G в начале импульса обусловлен ростом коэффициента поглощения α и соответственно уменьшением объема, в котором поглощается поток. Далее, значение α стабилизируется, и при постоянной ПС G не изменяется, а учет изменяющейся ПС приводит во второй половине

импульса к стремительному росту удельного поглощенного потока.

3. Обсуждение результатов. Сопоставление с представлениями о „поляритонном“ микроструктурировании поверхности

Рассмотрим полученные результаты в соответствии с модельными представлениями о поляритонном механизме фемтосекундного микроструктурирования поверхности кремния [10]. При облучении полированных пластин монокристаллического кремния лазерными импульсами длительностью 80 фс ($\lambda = 1.25$ мкм) при плотности энергии линейно поляризованного излучения $\sim (0.5-1)$ Дж/см² наблюдалось формирование поверхностных периодических структур (ППС), ориентированных перпендикулярно вектору поляризации лазерного 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. В случае воздействия на полупроводник лазерного импульса сравнительно большой длительности (сотни и более пикосекунд) возникновение оптического отклика, подобного металлу, связано со свойствами расплава, образующегося на поверхности в результате лазерного разогрева. При воздействии фемтосекундного излучения тепловые процессы развиваются после окончания импульса и 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). Хотя металлизация приповерхностного слоя полупроводника является необходимым и основным требованием для возбуждения ППП, это условие не является достаточным. Для ультракоротких воздействий процесс возбуждения ППП существенно усложняется явлениями внешней эмиссии. Согласно предварительным результатам численной модели, наличие эмиссионных потоков электронов с поверхности приводит к образованию обедненного носителями слоя и заглоблению максимального значения концентрации неравновесных носителей. Оценки, подобные приведенным в работе [12], показали, что при наличии обедненного носителями слоя у границы поверхностная волна может проникнуть сквозь него в поверхностно-активную среду, если толщина этого слоя $h \approx -\varepsilon_2 \lambda / 4\pi \varepsilon_1 \sqrt{-\varepsilon_2 + \varepsilon_1}$ порядка и менее 40 нм (при расчете принимаем диэлектрическую проницаемость слоя $\varepsilon_2 = -0.5$, $\varepsilon_1 = 1$, $\lambda = 1.25$ мкм).

Кроме того, благодаря куполообразной форме импульса (наиболее близкой к реальной) концентрация, достигая максимума в начале импульса, быстро уменьшается,

отслеживая временное распределение интенсивности лазерного излучения, сокращая и так короткий временной интервал взаимодействия поверхностной волны с падающей волной (см. рис. 2).

Учет в численной модели зависимости поглощательной способности полупроводника от температуры электронного газа приводит к изменению пространственно-временного распределения концентрации электронно-дырочной плазмы в полупроводнике, обеспечивая более благоприятные условия для возбуждения ППП: глубина залегания максимального значения концентрации неравновесных носителей снижается, а уровень высокой концентрации, обеспечивающий полную металлизацию полупроводника вблизи поверхности, поддерживается в течение всего импульса.

В настоящее время фемтосекундное микроструктурирование поверхности кремния, имеющее „поляритонную“ природу, наблюдается многими исследователями (см., например, [11–12]).

Также следует обратить внимание на результат, имеющий большое значение для ультракороткой лазерной обработки полупроводников, а именно, удельный поглощенный поток растет по мере действия лазерного импульса не только за счет уменьшения глубины, на которой происходит поглощение излучения, но и за счет роста температурной компоненты поглощательной способности. Учитывая тот факт, что поглощательная способность была рассмотрена в приближении высокочастотного аномального скин-эффекта, этот вывод важен и для оценки режимов лазерной обработки металлов.

4. Заключение

Полученные результаты позволяют уточнить модельные представления о воздействии интенсивного лазерного излучения на полупроводники.

Из результатов проведенного анализа следует, что динамика поглощательной способности в процессе фемтосекундного фотовозбуждения кремния оказывает существенное влияние на пространственно-временное распределение концентрации неравновесных носителей. Дополнение существующей модели интенсивного фотовозбуждения кремния температурной зависимостью поглощательной способности позволило получить распределение концентрации возбужденных носителей, соответствующее модельным представлениям о поляритонном механизме структурирования, что подтверждается многочисленными экспериментальными данными о фемтосекундном микроструктурировании поверхности кремния.

Анализ динамики удельного поглощенного потока свидетельствует о важной роли температурной составляющей поглощательной способности и, как следствие, необходимости ее учета в моделях, описывающих фемтосекундное воздействие, в том числе при оценках режимов ультракороткой лазерной обработки металлов и полупроводников.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ (№ 12-02-01194-а, 13-02-00971-а) и гранта президента НШ-619.2012.2.

Список литературы

- [1] R.R. Gattass, E. Mazur. *Nature Photonics*, **2** (4), 219 (2008).
- [2] S. Juodkazis, V. Mizeikis, H. Misawa. *J. App. Phys.*, **106**, 051 101 (2009).
- [3] N. Bellini, K.C. Vishnubhatla, F. Bragheri, L. Ferrara, P. Minzioni, R. Ramponi, I. Cristiani, R. Osellame. *Opt. Express*, **18**, 4679 (2010).
- [4] W. Sibbett, A.A. Lagatsky, C.T.A. Brown. *Opt. Express*, **20** (7), 6989 (2012).
- [5] E.G. Gamaly *Phys. Rep.*, **508**, 91 (2011).
- [6] М.Н. Либенсон. *Изв. РАН. Сер. физ.*, **65** (4), 515 (2001).
- [7] R.V. Dyukin, G.A. Martsinovskiy, O.N. Sergaeva, G.D. Shandybina, V.V. Svirina, E.B. Yakovlev. In: *Laser Pulses — Theory, Technology and Applications*, ed. by Igor Peshko, Chap. 7, Rijeka: InTech. (2012) p. 197.
- [8] B.N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. von Alvensleben, A. Tunnermann. *App. Phys. A: Mater. Sci. Proc.*, **63** (2), 109 (1996).
- [9] М.Н. Либенсон. *Лазерно-индуцированные оптические и термические процессы в конденсированных средах и их взаимное влияние* (СПб., Наука, 2007).
- [10] И.А. Остапенко, С.В. Заботнов, Г.Д. Шандыбина, Л.А. Голвань, А.В. Червяков, Ю.В. Рябчиков, В.В. Яковлев, В.Ю. Тимошенко, П.К. Кашкаров. *Изв. РАН. Сер. физ.*, **70** (9), 1315 (2006).
- [11] E.V. Golosov, A.A. Ionin, Y.R. Kolobov, S.I. Kudryashov, A.E. Ligachev, S.V. Makarov, Y.N. Novoselov, L.V. Seleznev, D.V. Sinitsyn. *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Proc.*, **104**, 701 (2011).
- [12] Y. Han, S. Qu. *Chem. Phys. Lett.*, **495**, 241 (2010).

Редактор Т.А. Полянская

Modeling absorption of a femtosecond laser pulse by monocrystalline silicon

I.V. Guk, G.A. Martsinovskiy, G.D. Shandybina, E.B. Yakovlev

Saint-Petersburg National Research University of Information Technologies, Mechanics and Optics,
197101 St. Petersburg, Russia

Abstract The influence of nonlinear nature of optical absorptivity and absorption coefficient under intensive photoexcitation of silicon is analyzed basing on the model of two-photon excitation of semiconductor with external emission taken into account. The obtained simulation results for absorption of a femtosecond laser pulse by monocrystalline silicon are compared to the experimental data on excitation of surface plasmon-polariton to clarify the mechanism of absorptivity changing. It is shown that nonlinear behavior of absorptivity should be taken into consideration when estimating conditions for laser processing of semiconductors. The further improvement of the model is also discussed.