

УДК 538.9

ОБРАЗОВАНИЕ ПОГЛОЩАЮЩЕГО СЛОЯ И СВЕРХБЫСТРЫЙ ПЕРЕХОД АРСЕНИДА ГАЛЛИЯ В МЕТАЛЛИЧЕСКОЕ СОСТОЯНИЕ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ

© 2019 г. С. И. Ашитков¹, А. В. Овчинников^{1, *}, Д. С. Ситников¹, М. Б. Агранат¹¹Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия

*E-mail: a.ovtch@gmail.com

Поступила в редакцию 26.02.2019 г.

После доработки 19.03.2019 г.

Принята к публикации 27.03.2019 г.

Экспериментально показано, что при воздействии на GaAs фемтосекундными лазерными импульсами с интенсивностью, близкой по величине к порогу плавления, в поверхностном слое глубиной ~30 нм происходит образование электронно-дырочной плазмы с последующим переходом в металлическое состояние. Данное явление наблюдается при воздействии лазерных импульсов с энергией кванта излучения как меньше, так и больше ширины запрещенной зоны. Образование электронно-дырочной плазмы и поглощающего слоя с металлическими свойствами обусловлено в основном механизмом лавинной ионизации электронным ударом.

DOI: 10.1134/S0040364419060036

ВВЕДЕНИЕ

Одним из важных вопросов при изучении плавления и абляции поверхностного слоя полупроводников при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов является механизм поглощения лазерного излучения. Ранее, например в [1–8], подобные исследования проводились при воздействии фемтосекундных импульсов с энергией кванта излучения, превышающей значение ширины запрещенной зоны E_g . В работе [4] предполагалось, что основная часть энергии лазерного импульса в кремнии при высоких интенсивностях поглощается в результате межзонного двухфотонного поглощения.

В [9] измерены значения порогов плавления F_{melt} и абляции F_{abl} для GaAs при воздействии нагревающего фемтосекундного импульса хром-форстеритового лазера на основной длине волны ($\lambda = 1240$ нм), когда $\hbar\omega < E_g$, а также на длине волны второй гармоники, когда $(2\hbar\omega) > E_g$ и длина пробега фотона на несколько порядков меньше, чем на основной длине волны. Несмотря на большую разницу в длинах пробега фотонов, пороговые значения плотности энергии нагревающего фемтосекундного импульса на двух длинах волн практически не отличаются.

В настоящей работе представлены результаты экспериментальных исследований комплексной диэлектрической проницаемости GaAs на длинах волн с энергией кванта больше и меньше ширины запрещенной зоны при потоке энергии нагревающего импульса вблизи порогов плавления и абляции поверхностного слоя. На основании результатов измерений получена зависимость глубины

поглощения от интенсивности фемтосекундного импульса. Обсуждается механизм возникновения плотной электронно-дырочной плазмы, приводящий к образованию тонкого сильно поглощающего поверхностного слоя. При существенном превышении порога плавления ($0.9F_{\text{abl}}$) на субпикосекундных временах наблюдался переход полупроводника в металлическое состояние, при котором действительная часть диэлектрической проницаемости становится отрицательной.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Источником излучения являлась уникальная хром-форстеритовая лазерная система, позволяющая генерировать фемтосекундные импульсы с длиной волны $\lambda = 1240$ нм [10]. Длительность импульсов (полная ширина на уровне половинной амплитуды, FWHM), измеренная с помощью автокоррелятора, составила $\tau \approx 100$ фс в приближении формы огибающей импульса sch^2 . Также с помощью кросс-коррелятора третьего порядка измерен временной профиль импульса в широком диапазоне изменения интенсивности. Отношение интенсивности (контраст) в максимуме к интенсивности за 1 пс до максимума составляло не менее 10^4 , а за 2 пс — более 10^6 .

Методика измерений пороговых значений плотности энергии нагревающего импульса при плавлении F_{melt} и абляции F_{abl} поверхностного слоя полупроводников подробно описана в [9]. Результаты измерений пороговых значений плотности энергии на поверхности образца при угле падения 45° p -поляризованного нагревающего

Таблица 1. Значения порогов плавления и абляции GaAs по данным работы [9]

Материал	Длина волны, нм	F_{melt} , мДж/см ²	F_{abl} , мДж/см ²
GaAs	620	90	190
	1240	130	200

импульса на длинах волн 1240 нм и 620 нм для GaAs представлены в табл. 1.

Эксперименты проводились с полированным монокристаллическим (100) образцом GaAs толщиной 0.4 мм. После каждого воздействия нагревающего импульса образец смещался на новое место.

Для исследования изменения оптических свойств образца в области воздействия была применена методика фемтосекундной интерференционной микроскопии [11, 12], позволяющая в схеме рипр-пробе-измерений получить информацию о динамике изменения амплитуды и фазы отраженной волны зондирующего излучения с временным разрешением $\sim 10^{-13}$ с. Нагрев поверхности полупроводника осуществлялся излучением на основной длине волны 1240 нм, а в качестве зондирующего импульса использовалось излучение как на длине волны $\lambda = 1240$ нм, так и на $\lambda = 620$ нм второй гармоники. Применение фурье-анализа интерферограмм и ПЗС-камеры

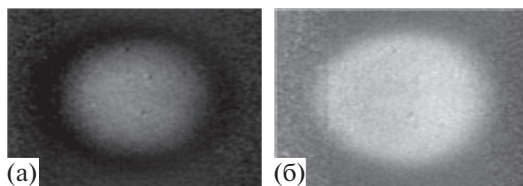


Рис. 1. Пространственное распределение амплитуды коэффициента отражения (а) и фазы (б) при плотности энергии в центре пятна $1.1F_{\text{abl}}$.

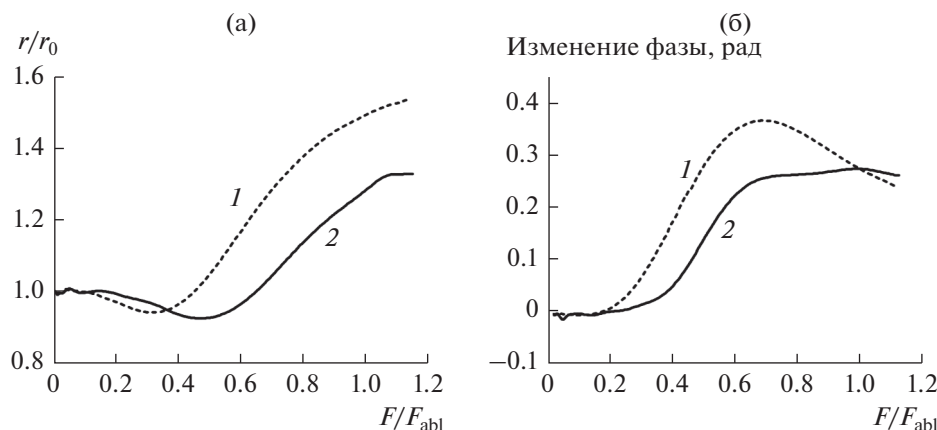


Рис. 2. Зависимость амплитуды (а) и фазы (б) комплексного коэффициента отражения GaAs от плотности энергии нагревающего лазерного импульса на двух длинах волн зондирующего излучения: 1 – 1240 нм, 2 – 620.

с размером матрицы 1024×1024 пикселей и разрядностью 12 бит позволяет при данных параметрах оптической схемы интерферометра [12] реализовать точность измерения изменения модуля коэффициента отражения менее 1% и изменения фазы $\sim \pi/200$ при величине пространственного разрешения ~ 2 мкм. При измерениях на длине волны 1240 нм ПЗС-камера работала в режиме двухфотонного поглощения.

Зависимость изменения амплитуды и фазы коэффициента отражения от плотности энергии нагревающего импульса измерялась в одном импульсе путем сопоставления с измеренным гауссовым распределением плотности энергии по сечению пучка [12]. Относительная погрешность измерений плотности энергии составляет $\pm 10\%$.

На рис. 1 представлены характерные пространственные распределения амплитуды и фазы комплексного коэффициента отражения пробного импульса ($\lambda = 620$ нм) от поверхности арсенида галлия при плотности энергии нагревающего импульса ($\lambda = 1240$ нм) больше значения порога абляции F_{abl} . Эксперименты проводились при фиксированной задержке (~ 200 фс) пробного импульса, т.е. практически сразу после окончания действия нагревающего импульса.

На рис. 2 представлены зависимости изменения амплитуды и фазы коэффициента отражения пробного импульса на длинах волн 620 и 1240 нм от плотности энергии нагревающего импульса сразу после окончания его действия.

Для определения оптических констант по измеренным значениям амплитуды и фазы комплексного коэффициента отражения используются формулы Френеля. Применение формул Френеля правомерно при наличии резкой границы и однородности диэлектрической проницаемости по глубине зондируемого слоя. При зондировании с временной задержкой относительно начала нагревающего лазерного импульса 200 фс движение границы поверхностного слоя является

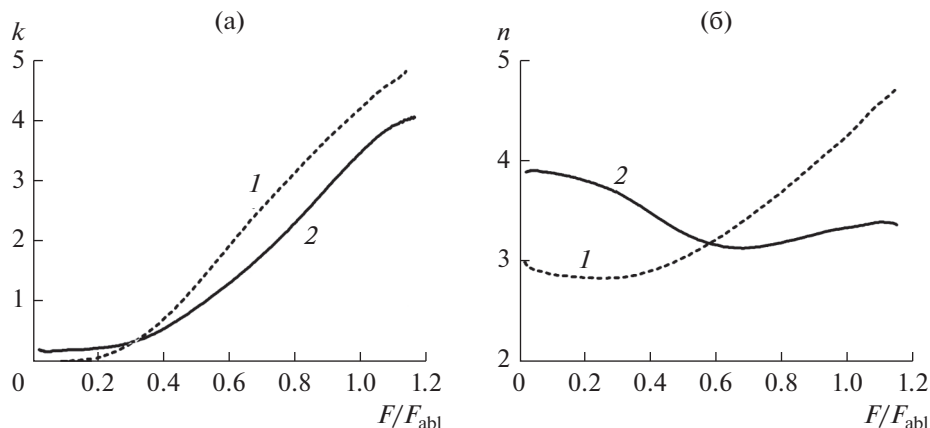


Рис. 3. Зависимости от потока энергии нагревающего лазерного импульса мнимой (а) и действительной (б) частей комплексного показателя преломления поверхностного слоя арсенида галлия: 1, 2 – как на рис. 2.

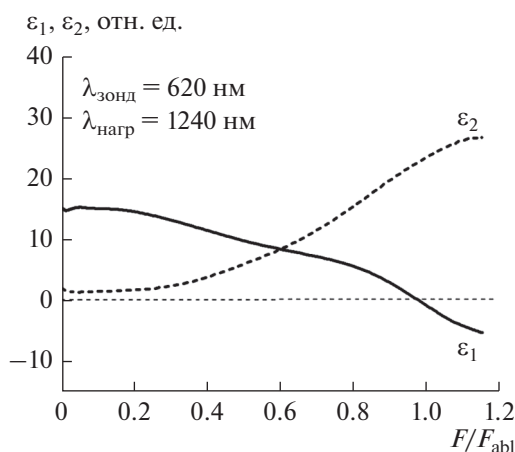


Рис. 4. Зависимость действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости GaAs от плотности энергии при длине волны зондирующего излучения 620 нм.

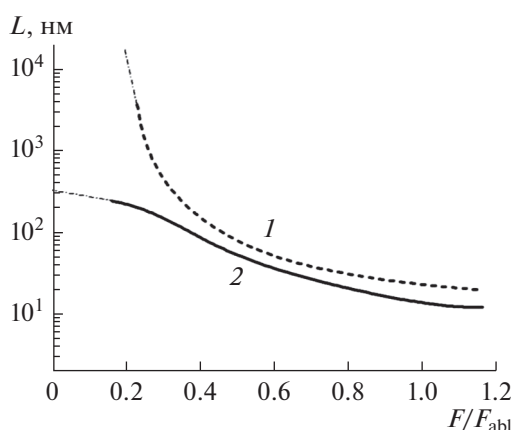


Рис. 5. Зависимость изменения глубины поглощения арсенида галлия от плотности энергии нагревающего лазерного импульса на двух длинах волн: 1 – 1240 нм, 2 – 620; штрихпунктирная линия – аппроксимация к значению L для невозбужденного образца.

незначительным, и поэтому границу можно считать резкой, но концентрация носителей в зондируемом слое неоднородна. Тем не менее, так как целью экспериментов является исследование изменения оптических констант от потока энергии нагревающего импульса, а не измерение их абсолютных значений, авторы полагают возможным использование формул Френеля, аналогичных формулам в работах [13, 14].

На рис. 3 приведены зависимости мнимой k и действительной n частей комплексного показателя преломления поверхностного слоя арсенида галлия, рассчитанные по формулам Френеля аналогично [12, 14] для двух длин волн пробного импульса (620 и 1240 нм), от потока энергии нагревающего лазерного импульса.

Значения оптических констант для необлученного образца арсенида галлия приведены в табл. 2.

Зависимости действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости от плотности энергии для арсенида галлия сразу после оконча-

ния действия нагревающего импульса представлены на рис. 4.

Видно, что при плотности энергии нагревающего импульса $0.9F_{abl}$ действительная часть диэлектрической проницаемости становится отрицательной, т.е. происходит переход полупроводник–металл.

На основании полученных результатов можно оценить, как меняется глубина поверхностного поглощающего слоя l ($l = \lambda / (4\pi k)$) в зависимости от плотности энергии нагревающего импульса

Таблица 2. Действительная и мнимая части комплексного показателя преломления GaAs для длин волн 620 и 1240 нм по данным работы [15]

Длина волны, нм	n	k
1240	3.232	1.33×10^{-4}
620	3.87	0.2

при различных длинах волн, когда энергия кванта излучения больше (при 620 нм) или меньше (1240 нм) ширины запрещенной зоны. Полученные зависимости приведены на рис. 5.

Анализ экспериментальных данных показывает, что при потоках с энергией выше $0.4F_{\text{abl}}$ глубины поглощения на разных длинах волн практически совпадают, хотя в невозбужденном состоянии глубина поглощения отличается на четыре порядка и составляет на длине волны 620 нм менее 1 мкм, а на 1240 нм — около 1 см. При плотности энергии нагревающего импульса, близкой к порогу абляции, поглощающий слой “схлопывается” до величин $\sim 30\text{--}40$ нм в результате перехода полупроводника в металлическое состояние.

Таким образом, механизм поглощения в GaAs при высоких интенсивностях излучения подобен механизму пробоя прозрачных диэлектриков [16]. При этом порог разрушения слабо зависит от энергии кванта нагревающего лазера. Качественно механизм поглощения можно представить следующим образом (аналогично [16]).

Затравочные электроны в зоне проводимости, возникшие, например, за счет двух (или более) фотонных процессов, поглощают энергию лазерного излучения, взаимодействуя с фонами (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 до величин, соответствующих переходу в металлическое состояние.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведенных исследований получены зависимости глубины поглощения излучения с энергией кванта больше и меньше ширины запрещенной зоны в поверхностном слое арсенида галлия от плотности энергии фемтосекундных лазерных импульсов видимого и ближнего инфракрасного диапазонов спектра вблизи порогов плавления и абляции. Полученные зависимости показывают, что при плотности энергии нагревающего импульса ниже порога плавления ($0.5F_{\text{melt}}$) значения глубины поглощения на разных длинах волн практически совпадают. Полученные данные позволяют объяснить равенство порогов [9] в случае воздействия излучением с энергией кванта больше и меньше ширины запрещенной зоны.

Все экспериментальные работы выполнены на уникальной тераваттной хром-форстеритовой лазерной системе (УНУ “ЛТФК”) в центре коллективного пользования “Лазерный фемтосекундный комплекс” ОИВТ РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Shank C.V., Yen R., Hirlimann C.* Time-resolved Reflectivity Measurements of Femtosecond-optical-pulse-induced Phase Transitions in Silicon // *Phys. Rev. Lett.* 1983. V. 50. P. 454.
2. *Tanaka T., Harata A., Sawada T.* Subpicosecond Surface-restricted Carrier and Thermal Dynamics by Transient Reflectivity Measurements // *J. Appl. Phys.* 1997. V. 82. P. 4033.
3. *Sokolowski-Tinten K., Bialkowski J., Boring M., Cavalleri A., von der Linde D.* Thermal and Nonthermal Melting of Gallium Arsenide after Femtosecond Laser Excitation // *Phys. Rev. B.* 1998. V. 58. R11805.
4. *Sokolowski-Tinten K., von der Linde D.* Generation of Dense Electron-hole Plasmas in Silicon // *Phys. Rev. B.* 2000. V. 61. P. 2643.
5. *Callan J., Kim A.M.-T., Huang L., Mazur E.* Ultrafast Electron and Lattice Dynamics in Semiconductors at High Excited Carrier Densities // *Chem. Phys.* 2000. V. 251. P. 167.
6. *Bonse J., Brzezinka K.-W., Meixner A.J.* Modifying Single-crystalline Silicon by Femtosecond Laser Pulses: An Analysis by Micro Raman Spectroscopy, Scanning Laser Microscopy, and Atomic Force Microscopy // *Appl. Surf. Sci.* 2004. V. 221. P. 215.
7. *Ионин А.А., Кудряшов С.И., Селезнев Л.В., Синицын Д.В.* Динамика откольной абляции поверхности GaAs под действием фемтосекундных лазерных импульсов // *Письма в ЖЭТФ.* 2011. Т. 94. С. 816.
8. *Gunnella R., Zgrablic G., Giangrisostomi E., D'Amico F., Principi E., Masciovecchio C., Di Cicco A., Parmigiani F.* Ultrafast Reflectivity Dynamics of Highly Excited Si Surfaces Below the Melting Transition // *Phys. Rev. B.* 2016. V. 94. 155427.
9. *Агранат М.Б., Анисимов С.И., Ашитков С.И., Овчинников А.В., Кондратенко П.С., Ситников Д.С., Фортвов В.Е.* О механизме поглощения фемтосекундных лазерных импульсов при плавлении и абляции Si и GaAs // *Письма в ЖЭТФ.* 2006. Т. 83. С. 592.
10. *Агранат М.Б., Ашитков С.И., Иванов А.А., Конященко А.В., Овчинников А.В., Фортвов В.Е.* Тераваттная фемтосекундная лазерная система на хром-форстерите // *Квантовая электроника.* 2004. Т. 34. С. 506.
11. *Temnov V.V., Sokolowski-Tinten K., Zhou P., von der Linde D.* Ultrafast Imaging Interferometry at Femtosecond Laser-excited Surfaces // *J. Opt. Soc. Am. B.* 2006. V. 23. P. 1954.
12. *Ситников Д.С., Комаров П.С., Овчинников А.В., Ашитков С.И.* Фемтосекундная фурье-интерферометрия неидеальной плазмы // *ЖТФ.* 2009. Т. 79. № 4. С. 75.
13. *Morikami H., Yoneda H., Ueda K., More R.M.* Detection of Hydrodynamic Expansion in Ultrashort Pulse Laser Ellipsometric Pump-probe Experiments // *Phys. Rev. E.* 2004. V. 70. 035401(R).
14. *Ашитков С.И., Комаров П.С., Струлева Е.В., Юркевич А.А., Агранат М.Б.* Экспериментальные измерения оптических постоянных металлов, находящихся в двухтемпературном состоянии // *ТВТ.* 2016. Т. 54. № 6. С. 957.
15. *Palik E.D.* Handbook of Optical Constants of Solids II. San Diego: Acad. Press, 1991.
16. *Schaffer C.B., Brodeur A., Mazur E.* Laser-induced Breakdown and Damage in Bulk Transparent Materials Induced by Tightly Focused Femtosecond Laser Pulses // *Measurement Sci. Technol.* 2001. V. 12. № 11. P. 1784.