УДК 621.373.535 DOI: 10.17586/0021-3454-2015-58-8-664-669

ТЕРМАЛИЗАЦИЯ ЭЛЕКТРОННОГО ГАЗА И РОЛЬ ЭФФЕКТА НАСЫЩЕНИЯ МЕЖЗОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ ФЕМТОСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРНОГО ИМПУЛЬСА НА ПОЛУПРОВОДНИКИ И ДИЭЛЕКТРИКИ

Д. С. Поляков, Е. Б. Яковлев

Университет ИТМО, 197101, Санкт-Петербург, Россия E-mail: polyakovdmitry1988@gmail.com

Проанализирована эволюция функции распределения фотовозбужденных носителей по энергии при воздействии на полупроводниковые и диэлектрические материалы ультракороткого лазерного импульса. Анализ выполнен на основе кинетического уравнения Больцмана для фотовозбужденных носителей с учетом процессов межзонного поглощения, внутризонного поглощения и релаксации за счет столкновений. Приведены оценки времени термализации фотовозбужденных электронов. Исследовано влияние эффекта насыщения межзонного поглощения на концентрацию свободных электронов. Представлены зависимости концентрации фотовозбужденных носителей от плотности энергии фемтосекундного импульса.

Ключевые слова: фемтосекундный импульс, время термализации, насыщение межзонного поглощения, диэлектрик, полупроводник, воздействие лазерного излучения.

Хорошо известно, что при воздействии мощных фемтосекундных импульсов на полупроводники и диэлектрики концентрация фотовозбужденных носителей (электронов и дырок) может достигать 10^{21} см⁻³ [1]. Наиболее широко используется теоретическое описание процесса нагрева полупроводников и диэлектриков в подобных условиях на основе совместного решения уравнения для концентрации неравновесных носителей, учитывающего процессы ионизации, рекомбинации, диффузии, эмиссии, и системы уравнений двухтемпературной модели (см., например, [2, 3]). При этом полагается, что функция распределения носителей по энергии является локально-равновесной. Для обоснования подобного допущения необходимо проследить эволюцию этой функции при облучении фемтосекундным импульсом, используя кинетические уравнения. Для адекватной оценки влияния эффекта насыщения межзонного поглощения на пространственно-временное распределение фотовозбужденной электрондырочной плазмы при воздействии ультракороткого лазерного импульса необходимо детально знать эволюцию функции распределения носителей вблизи экстремумов зон. Этот эффект экспериментально наблюдался при воздействии миллисекундных импульсов на кремний [4], для фемтосекундных воздействий его роль остается не выясненной.

Целью настоящей работы является оценка времени установления локального равновесия (времени термализации) в электронной и дырочной подсистеме полупроводника и диэлектрика, облучаемого фемтосекундным лазерным импульсом, а также определение влияния эффекта насыщения межзонного поглощения на концентрацию фотовозбужденных носителей. Поглощение излучения (в том числе многофотонное) в полупроводниках и диэлектриках происходит при межзонных переходах, что приводит к генерации свободных носителей, по мере роста концентрации которых внутризонное поглощение (поглощение на свободных носителях) становится существенным. Поэтому нагреваемый ультракоротким лазерным импульсом полупроводник в некотором приближении можно представить в виде трех взаимодействующих подсистем: газа электронов, газа дырок, газа фононов (решеточная подсистема). При этом электроны и дырки поглощают излучение, их распределение по энергиям может быть неравновесным, а концентрация может существенно меняться в процессе воздействия импульса.

В настоящей работе рассмотрена простейшая зонная структура полупроводника или диэлектрика со сферическими изоэнергетическими поверхностями для электронов и дырок, характеризующаяся квадратичным законом дисперсии. Описан процесс взаимодействия фемтосекундного импульса с материалом на временном масштабе порядка длительности импульса (~100 фс). В этом случае можно пренебречь процессами рекомбинации носителей (кроме вынужденной излучательной рекомбинации), а также взаимодействием носителей с решеткой. Система уравнений, описывающая изменение функций распределения электронов и дырок при воздействии фемтосекундного лазерного импульса, будет иметь вид:

$$\begin{pmatrix} \frac{\partial f_e}{\partial t} \end{pmatrix} = \left(\frac{\partial f_e}{\partial t} \right)_{abs} + \left(\frac{\partial f_e}{\partial t} \right)_{fe abs} + \left(\frac{\partial f_e}{\partial t} \right)_{e-e} + \left(\frac{\partial f_e}{\partial t} \right)_{e-h},$$

$$\begin{pmatrix} \frac{\partial f_h}{\partial t} \end{pmatrix} = \left(\frac{\partial f_h}{\partial t} \right)_{abs} + \left(\frac{\partial f_h}{\partial t} \right)_{fh abs} + \left(\frac{\partial f_h}{\partial t} \right)_{h-h} + \left(\frac{\partial f_h}{\partial t} \right)_{h-e},$$

где f_e, f_h — функции распределения электронов и дырок соответственно, слагаемые $\left(\frac{\partial f_e}{\partial t}\right)_{abs}$ и

 $\left(\frac{\partial f_h}{\partial t}\right)_{abs}$ описывают генерацию электрон-дырочных пар при межзонном поглощении квантов

излучения, $\left(\frac{\partial f_e}{\partial t}\right)_{feabs}$ и $\left(\frac{\partial f_h}{\partial t}\right)_{fhabs}$ — поглощение на свободных носителях, $\left(\frac{\partial f_e}{\partial t}\right)_{e-e}$ и $\left(\frac{\partial f_h}{\partial t}\right)_{h-h}$ — столкновения между носителями одного типа, слагаемые $\left(\frac{\partial f_e}{\partial t}\right)_{e-h}$ и $\left(\frac{\partial f_h}{\partial t}\right)_{h-e}$

описывают столкновения носителей разных типов.

Изменение функции распределения электронов при межзонном поглощении описывает следующее выражение:

$$\left(\frac{\partial f_e}{\partial t}\right)_{\text{abs}} = \sum_n \int \left(w_n(\mathbf{p}_h, \mathbf{p}_e) \left(1 - f_e\right) \left(1 - f_h\right) - w_n(\mathbf{p}_e, \mathbf{p}_h) f_e f_h \right) \frac{2d\mathbf{p}_h}{\left(2\pi\hbar\right)^3},\tag{1}$$

где $w_n(\mathbf{p}_h, \mathbf{p}_e)$ — вероятность генерации в единицу времени электрона с импульсом \mathbf{p}_e и дырки с импульсом \mathbf{p}_h при *n*-фотонном межзонном поглощении, \hbar — постоянная Планка. В выражении (1) наряду с генерацией свободных носителей при межзонном поглощении учтена возможность обратного процесса — вынужденной излучательной рекомбинации (второе слагаемое в подынтегральном выражении). Значения $w_n(\mathbf{p}_h, \mathbf{p}_e)$ определяются исходя из имеющихся экспериментальных данных. При типичных соотношениях ширины запрещенной зоны и энергии кванта в полупроводниках имеет место линейное и двухфотонное поглощение.

Взаимодействие носителей описывается с помощью экранированного кулоновского потенциала. Выражения для слагаемых $\left(\frac{\partial f_e}{\partial t}\right)_{e-e}$, $\left(\frac{\partial f_h}{\partial t}\right)_{h-h}$, $\left(\frac{\partial f_e}{\partial t}\right)_{e-h}$, $\left(\frac{\partial f_h}{\partial t}\right)_{h-e}$, $\left(\frac{\partial f_e}{\partial t}\right)_{fe \text{ abs}}$ и

 $\left(\frac{\partial f_h}{\partial t}\right)_{fhabs}$ аналогичны использованным в работе [5] при описании электрон-электронных

столкновений и поглощения на свободных носителях в металлах.

На рис. 1, *a*, *б* показана эволюция функции распределения полупроводника (кремний: ширина запрещенной зоны $E_g = 1,1$ эВ; эффективная масса электрона $m_e = 1,08m_0, m_0$ — эффективная масса свободного электрона; эффективная масса дырки $m_h = 0,6m_0$ [6] при облучении импульсом длительностью $t_p = 120$ фс, поглощенная плотность энергии $Q_a = 1$ Дж/см², длина волны 800 нм (пунктир — равновесная, сплошная кривая — рассчитанная функция распределения). Как видно из рис. 1, *a*, распределение мало отличается от равновесного после 15-й фемтосекунды. Поведение функции распределения для дырок аналогично. Значение функции распределения электронов и дырок вблизи экстремумов зон значительно больше нуля, соответственно эффект насыщения межзонного поглощения играет заметную роль.



На рис. 1, *в*, *г* приведены аналогичные результаты для диэлектрика (MgO, $m_e = m_h = m_0$, $E_g = 7,5$ эВ) при $t_p \sim 80$ фс и $Q_a = 14$ Дж/см². Как видно из рис. 1, *г*, функция распределения в целом достаточно близка к равновесной к 25-й фемтосекунде, однако в области низких энергий рассчитанная функция распределения электронов примерно в 2,5 раза больше равновесной. Соответственно нетермализованные электроны, сгенерированные у дна зоны проводимости, способствуют усилению роли эффекта насыщения поглощения.

На рис. 2, *а* зависимость максимальной концентрации электрон-дырочной плазмы от плотности энергии, рассчитанная с учетом эффекта насыщения межзонного поглощения, сравнивается с зависимостью, полученной в эксперименте [7] при $t_p = 250$ фс и $\lambda = 1200$ нм для кремния (точки — данные эксперимента, сплошная кривая — расчет, пунктир — расчет без учета насыщения межзонного поглощения). На экспериментальной кривой значения концентрации электронов в области $Q_a > 50$ мДж/см² меньше значений, рассчитанных в соответствии с параболической зависимостью, характерной для двухфотонного поглощения. Из рис. 2, *а*

видно, что заметные отклонения рассчитанной зависимости от параболической также начинают проявляться в области $Q_a \sim 50$ —60 мДж/см². Таким образом, наблюдаемое в эксперименте отклонение может быть связано с эффектом насыщения межзонного поглощения.

На рис. 2, б приведена рассчитанная зависимость максимальной концентрации электронов для широкого диапазона поглощенных плотностей энергий (точки — расчет, сплошная кривая — параболическая зависимость, полученная без учета насыщения поглощения). Как видно, имеет место насыщение роста концентрации. В то же время подавление фотоиндуцированных переходов, вызванное заполнением электронами дна зоны проводимости и одновременно идущим обеднением валентной зоны, не приводит к полному прекращению роста концентрации с повышением плотности энергии. Как видно из рис. 2, б, при $Q_a \sim 1 \text{ Дж/см}^2$ концентрация электрон-дырочной плазмы $\approx 4 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$, что согласуется с представлениями о поляритонном механизме структурирования поверхности кремния [8].



На рис. 3 приведена зависимость максимальной концентрации свободных электронов в MgO от плотности энергии импульса на длине волны 800 нм (точки — расчет по предложенной в работе модели, треугольники — расчет с учетом насыщения поглощения, но без учета неравновесности распределения электронов, сплошная кривая — расчет без учета насыщения поглощения). На этой длине волны для оксида магния характерно пятифотонное поглощение, при этом превышение энергии фотовозбужденного электрона над дном зоны проводимости относительно невелико: ($5n\hbar\omega - E_g$) ~ 0,3 эВ (ω — частота излучения). В этом случае также наблюдается заметное отклонение от простого степенного закона ($n_e \sim Q_a^5$, сплошная кривая), учет роли нетермализованных электронов при описании насыщения межзонного поглощения приводит к уменьшению концентрации свободных электронов примерно в два раза при $Q_a \sim 20$ Дж/см².



Отметим, что насыщение роста концентрации свободных электронов в MgO экспериментально наблюдалось в работе [9]. Экспериментальные данные [9] качественно соответствуют выполненным расчетам (рис. 3), однако измеренные значения концентрации в [9] на порядок ниже полученных в настоящей работе. По-видимому, это может быть связано с тем, что в [9] измерялось усредненное значение концентрации, в то время как в настоящей работе определялось максимальное значение.

В работе показано, что время термализации свободных носителей полупроводника при облучении фемтосекундным лазерным импульсом $\approx 10-20$ фс. Эффект насыщения межзонного поглощения оказывает существенное влияние на концентрацию фотовозбужденной электрон-дырочной плазмы в полупроводниках и диэлектриках, причем при облучении ди-электрика в условиях, когда величина ($n\hbar\omega - E_g$) мала, необходимо учитывать неравновесность распределения носителей.

Работа выполнена при государственной финансовой поддержке ведущих университетов Российской Федерации (субсидия 074-U01), поддержана грантами РФФИ 13-02-00971 а, 13-02-00033 и грантом президента РФ по поддержке ведущих научных школ НШ-1364.2014.2.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Sokolowski-Tinten K., von der Linde D. Generation of dense electron-hole plasmas in silicon // Phys. Rev. 2000. Vol. 61. P. 2643—2650.
- 2. Булгакова Н. М., Стоян Р., Розенфельд А. Лазерно-индуцированная модификация прозрачных кристаллов и стекол // Квантовая электроника. 2010. Т. 41, № 11. С. 966—985.
- 3. Дюкин Р. В., Марциновский Г. А., Шандыбина Г. Д., Яковлев Е. Б. Электрофизические явления при фемосекундных лазерных воздействиях лазерного излучения на полупроводники // Оптический журнал. 2011. Т. 78, № 2. С. 8—13.
- 4. *Либенсон М. Н.* Лазерно-индуцированные оптические и термические процессы в конденсированных средах и их взаимное влияние. СПб: Наука, 2007. 423 с.
- 5. Поляков Д. С., Яковлев Е. Б. Релаксация возбуждения в электронной подсистеме металла при облучении ультракороткими лазерными импульсами // Оптический журнал. 2014. Т. 81, № 1. С. 32—37.
- 6. Акципетров О. А., Баранова И. М., Евтюхов К. Н. Нелинейная оптика кремния и кремниевых наноструктур. М.: Физматлит, 2012. 544 с.
- 7. Кононенко В. В., Заведеев В. В., Латушко М. И., Пашинин В. П., Конов В. И., Дианов Е. М. Возбуждение электронной подсистемы кремния с помощью фемтосекундного лазерного облучения // Квантовая электроника. 2012. Т. 42, № 10. С. 925—930.
- 8. Марциновский Г. А., Шандыбина Г. Д., Смирнов Д. С., Заботнов С. В., Головань Л. А., Тимошенко В. Ю., Кашкаров П. К.. Ультракороткие возбуждения поверхностных поляритонов и волноводных мод в полупроводниках // Оптика и спектроскопия. 2008. Т. 105, № 1. С. 75—81.
- 9. Quere F., Guizard S., Martin P., Petite G., Gobert O., Meynadier P., Perdrix M. Ultrafast carrier dynamics in laserexited materials: subpicoseconds optical studies // Applied Physics B. 1999. Vol. 68. P. 459-463.

Сведения об авторах

Дмитрий Сергеевич Поляков — Университет ИТМО; кафедра лазерных технологий и лазерной техники; инженер; E-mail: polyakovdmitry1988@gmail.com

Евгений Борисович Яковлев — д-р техн. наук, профессор; Университет ИТМО; кафедра лазерных технологий и лазерной техники; E-mail: yak@lastech.ifmo.ru

Рекомендована кафедрой лазерных технологий и лазерной техники

Поступила в редакцию 03.05.15 г.

Ссылка для цитирования: Поляков Д. С., Яковлев Е. Б. Термализация электронного газа и роль эффекта насыщения межзонного поглощения при воздействии фемтосекундного лазерного импульса на полупроводники и диэлектрики // Изв. вузов. Приборостроение. 2015. Т. 58, № 8. С. 664—669.

THERMALISATION OF ELECTRON GAS AND THE ROLE OF SATURATION OF INTERBAND AB-SORPTION UNDER THE ACTION OF FEMTOSECOND LASER PULSE IN SEMICONDUCTORS AND DIELECTRICS

D. S. Polyakov, E. B. Yakovlev

ITMO University, 197101, Saint Petersburg, Russia E-mail: polyakovdmitry1988@gmail.com

Evolution of energy distribution function for photo-excited charge carriers In a semiconductor and dielectric under the action of femtosecond laser pulse is analyzed. The consideration is based on Boltzmann kinetic equation for the carriers with due regard for the effects of interzone absorption as well as intra-zone absorption and collision relaxation. Thermalisation time for photo-excited electrons is estimated. The influence of saturation of interband absorption on concentration of free electrons is studied. Dependence of concentration of photo-excited electrons on energy density in incident femtosecond laser radiation.

Keywords: femtosecond pulse, thermalisation time, saturation of interband absorption, dielectric, semiconductor, laser radiation action.

Data on autions		
Dmitry S. Polyakov	—	ITMO University, Department of Laser Technologies and Instrumentation;
		Engineer; E-mail:polyakovdmitry1988@gmail.com
Eugeny B. Yakovlev	—	Dr. Sci., Professor; ITMO University, Department of Laser Technologies
		and Instrumentation; E-mail: yak@lastech.ifmo.ru

Reference for citation: *Polyakov D. S., Yakovlev E. B.* Thermalisation of electron gas and the role of saturation of interband absorption under the action of femtosecond laser pulse in semiconductors and dielectrics // Izvestiya Vysshikh Uchebnykh Zavedeniy. Priborostroenie. 2015. Vol. 58, N 8. P. 664—669 (in Russian).

DOI: 10.17586/0021-3454-2015-58-8-664-669