

ТРАНСФОРМАЦИЯ ОПТИЧЕСКОГО ФОНОННОГО СПЕКТРА КРЕМНИЯ В ПРОЦЕССЕ ВОЗДЕЙСТВИЯ МОЩНЫХ ПИКΟΣЕКУНДНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ

С.В.Говорков, В.Н.Задков, Н.И.Коротеев, И.Л.Шумай

С помощью активной спектроскопии комбинационного рассеяния с использованием пикосекундных импульсов зарегистрированы спектры оптического фона в кристаллическом кремнии при разных уровнях возбуждения (вплоть до плавления). Трансформация спектров свидетельствует о значительном разогреве фононной подсистемы и генерации сильных фотостимулированных механических напряжений на временах порядка 10 пс.

1. В настоящей статье мы сообщаем результаты эксперимента, в котором впервые зарегистрирована трансформация спектра комбинационного рассеяния (КР) приповерхностных слоев кристаллического кремния с высоким временным (~ 30 пс) и спектральным ($\sim 3 \text{ см}^{-1}$) разрешением при одновременном возбуждении (вплоть до плавления) поверхности Si мощными пикосекундными импульсами видимого диапазона. Спектры получены по схеме активной спектроскопии КР (АСКР) в геометрии "на отражение". Полученные данные совместно с результатами численного эксперимента свидетельствуют о быстром разогреве оптических фононов в центре зоны Бриллюэна в течение лазерного импульса и о возникновении сильных светоиндуцированных упругих напряжений в приповерхностном слое.

2. Спектроскопия КР с временным разрешением способна давать уникальную информацию о динамике фононной подсистемы фотовозбужденных приповерхностных слоев кристаллов^{1, 2}. Так, измерение фононных спектров КР с наносекундным временным разрешением позволило установить, что плавление поверхности кремния "гигантскими" лазерными импульсами происходит при температуре, равной температуре плавления в равновесных условиях (см., например,³). В пикосекундном диапазоне таких измерений до сих пор не проводилось из-за больших технических трудностей, хотя именно такие измерения способны дать принципиально важную информацию о процессах возбуждения и термализации фононной подсистемы при междузонном поглощении мощных коротких лазерных импульсов, а также о связи этих процессов с плавлением кристалла.

3. На рис. 1 представлена схема экспериментальной установки. Источниками пикосекундных импульсов с перестраиваемыми частотами ω_1 и ω_2 служили два лазера на растворах органического красителя, синхронно накачиваемые цугами импульсов второй гармоники лазера на АИГ: Nd с пассивной синхронизацией мод. Излучение с частотой ω_1 одновременно служило для возбуждения поверхности кристалла. Сигнал АСКР на частоте $\omega_a = 2\omega_1 - \omega_2$ при сканировании разности частот $\omega_1 - \omega_2$ в области комбинационного резонанса после пространственной и спектральной фильтрации регистрировался фотоумножителем, накопление данных и перестройка частоты осуществлялись микро-ЭВМ. Были сняты спектры оптической фононной моды F_{2g} (см. рис. 2) при нескольких значениях плотности энергии E

возбуждающего излучения — от $E = (0,30 \pm 0,05) E_0$ до $E \approx E_0$ ($E_0 \approx 0,2$ Дж/см² — плотность энергии излучения с $\lambda = 560$ нм, вызывающая плавление). Диаметр освещенной области поверхности образца составлял 700 мкм. При комнатной температуре в отсутствие возбуждения спектр оптического фонона представляет собой относительно узкую ($\approx 3,5$ см⁻¹) интенсивную линию, расположенную на частоте ≈ 520 см⁻¹. Как видно из рис. 2, по мере роста интенсивности возбуждения, наблюдается значительное уширение и изменение формы линии, а также падение ее интенсивности по сравнению с нерезонансным (электронным) фоном. Эти изменения, как мы полагаем, обусловлены неоднородным уширением фоновой линии из-за значительного повышения фоновой температуры, генерации плотной электронно-дырочной плазмы и вызываемых ею через механизм электрон-фононного потенциала деформации сильных механических напряжений в приповерхностном слое.

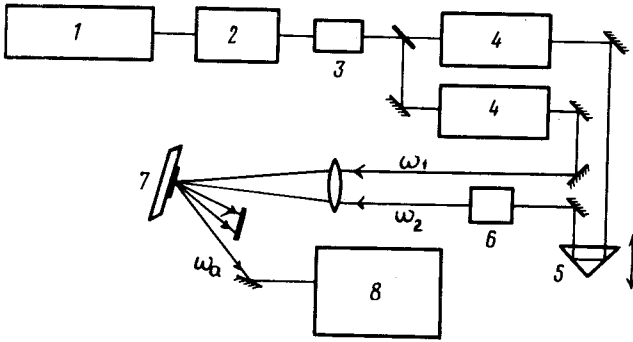


Рис. 1

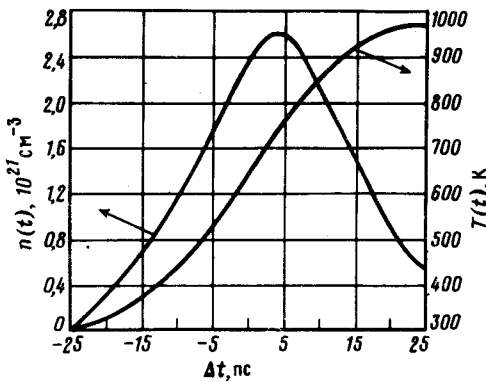


Рис. 3

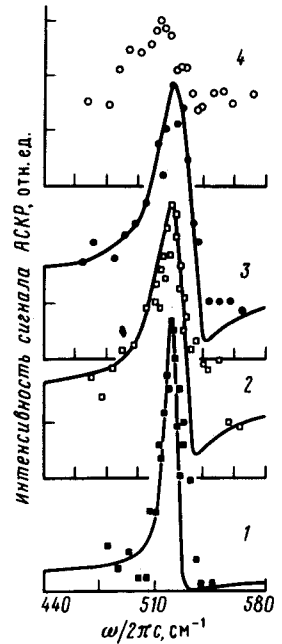


Рис. 2

Рис. 1. Блок-схема эксперимента: 1 — лазер на АИГ: Nd с пассивной синхронизацией мод, 2 — усилитель, 3 — удвоитель частоты, 4 — лазеры на растворе родамина-6G (длительность импульса 30 пс), 5 — линия задержки, 6 — вращатель поляризации, 7 — образец Si(100), 8 — система управления и регистрации, работающая под управлением микро-ЭВМ

Рис. 2. Экспериментальные (точки) и рассчитанные (сплошные кривые) АСКР-спектры кремния при разных уровнях плотности энергии возбуждающих импульсов E . Максимальные значения температуры, концентрации свободных носителей и механических напряжений, полученные при теоретической подгонке экспериментальных спектров:

- 1 — $E = 0,3E_0$, $T = 700$ К, $n = 1,6 \cdot 10^{21}$ см⁻³, $p = 10$ кбар;
- 2 — $E = 0,5E_0$, $T = 970$ К, $n = 2,6 \cdot 10^{21}$ см⁻³, $p = 27$ кбар;
- 3 — $E = 0,7E_0$, $T = 1240$ К, $n = 3,5 \cdot 10^{21}$ см⁻³, $p = 40$ кбар;
- 4 — $E \approx E_0$

Рис. 3. Пример рассчитанных зависимостей $n(t)$ и $T(t)$ на поверхности кремния при $E = 0,5E_0$

4. Количественную оценку температуры решетки (T), концентрации фотовозбужденных свободных носителей (n) и механических напряжений в кристалле (p) мы провели путем численного моделирования экспериментальных спектров. Смещение центра линии КР под влиянием температуры T и механического напряжения $p = -K(\partial U/\partial z)$ (K — модуль сжа-

тия, U — смещение, z — координата, отсчитываемая вглубь образца) происходит в противоположных направлениях: как показано в статических экспериментах ⁴, наличие сдвигивающего напряжения вызывает высокочастотный сдвиг фононной линии с коэффициентом $0,47 \text{ см}^{-1}/\text{кбар}$, тогда как нагрев решетки приводит к "размягчению" фононной моды и уширению линии КР в низкочастотную область ⁵. Таким образом, ширина и спектральное положение линии несут информацию о температуре фононной моды и величине механических напряжений, возникающих во время действия импульса. Необходимо однако, учесть, что T и p быстро меняются как вглубь, так и по поперечным координатам образца, а также во времени, в результате чего наблюдаемый интегральный спектр является неоднородно уширенным. Поэтому непосредственное извлечение данных о T и p из спектров затруднено и необходимо их численное моделирование.

Уравнения для T , n и смещения U имеют вид

$$\partial T(t, z)/\partial t = I(t, z)(\hbar\omega_1 - E_g)(1 - R)/d_0 \rho c_p \hbar\omega_1,$$

$$\partial n(t, z)/\partial t = -\gamma n^3 + I(t, z)(1 - R)/d_0 \hbar\omega_1,$$

$$\partial^2 U/\partial t^2 - c_0^2 (\partial^2 U/\partial z^2) = (\theta_0/\rho) \cdot (\partial n/\partial z),$$

где $I(t, z) = I_0(t)\exp(-z/d_0)$ — интенсивность излучения, имеющая форму гауссова импульса с длительностью 30 пс, d_0 — глубина поглощения излучения, R — коэффициент отражения, c_p — удельная теплоемкость, ρ — плотность, c_0 — скорость звука, γ — коэффициент ожерезной комбинации, θ_0 — потенциал деформации. Пример зависимостей $n(t)$ и $T(t)$, рассчитанных для $E = \int I(t)dt = 0,5 E_0$ приведен на рис. 3.

В процессе подгонки экспериментальных спектров варьировались значение потенциала деформации θ_0 , определяющее величину напряжений p при заданных n , а также глубина зондирования приповерхностного слоя d . Как видно из рис. 2, в рамках такой относительно простой модели достигается хорошее согласие с экспериментом при $\theta_0 = 15 \text{ эВ}$ и $d = 1000 \text{ \AA}$ (кривые 1 — 3 на рис. 2). Мы не предпринимали попыток численного моделирования спектра "4" на рис. 2 из-за сложности учета изменения оптических характеристик кристалла при плавлении.

5. Таким образом, в результате анализа данных эксперимента мы смогли убедиться в том, что на временных масштабах порядка 10 пс достигается значительный разогрев оптической фононной моды в центре зоны Бриллюэна. Это обстоятельство с учетом известного факта, что энергия фотовозбужденных электронов в кремнии передается преимущественно в коротковолновые участки фононных ветвей ⁶, свидетельствует о высоких скоростях термализации энергии в пределах оптической части фононной подсистемы. Впервые также получены данные о генерации значительных (десятки килобар) неоднородных напряжений в приповерхностном слое кристалла при поглощении мощного пикосекундного импульса.

Авторы признательны С.А.Ахманову за поддержку работы, А.Ю.Абдуллаеву, Г.И.Петрову, В.И.Емельянову за помощь и стимулирующие дискуссии.

Литература

1. Ахманов С.А., Емельянов В.И., Коротеев Н.И., Семиногов В.Н. УФН, 1985, 147, 675.
2. Kash J.A., Tsang J.C., Hyam J.M. Phys. Rev. Lett., 1985, 54, 2151.
3. Wartmann G., Kemmler M., von der Linde D. Phys. Rev. B, 1984, 30, 4850.
4. Balkanski M., Wallis R.F., Maro E. Phys. Rev. B, 1983, 28, 1928.
5. Anastassakis A., Pinczuk A., Burstein E. et al. Solid State Comm., 1970, 8, 133.
6. Compaan A. J. of Lum., 1985, 30, 425.