

Уплотнение электронного газа и кулоновский взрыв в поверхностном слое проводника, нагреваемого фемтосекундным лазерным импульсом

С. И. Кудряшов¹⁾, В. И. Емельянов

Международный лазерный центр, Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119899 Москва, Россия

Поступила в редакцию 14 мая 2001 г.

На основании полученных экспериментальных данных выдвинута гипотеза, что при сильном неоднородном нагреве скин-слоя проводящих материалов фемтосекундным лазерным импульсом в нем возникает двойной электрический слой, состоящий из “поверхностного” слоя положительных ионов и “подповерхностного” тонкого (около 1 нм) слоя сверхплотного (10^{23} – 10^{25} см⁻³) вырожденного электронного газа и разрушающийся в результате кулоновского взрыва в течение одной пикосекунды.

PACS: 78.47.+p

Взаимодействие сверхкоротких лазерных импульсов с проводниками традиционно исследуется в рамках двухтемпературной модели (ДТМ) [1], рассматривающей отдельно электронную и фононную подсистемы вещества в масштабе характерного времени электрон-фононного взаимодействия (порядка пикосекунд для большинства металлов). Подавляющее большинство экспериментальных работ, связанных с изучением характерных параметров данной модели – времен электрон-электронной релаксации и термализации электронного газа, постоянной электрон-фононного взаимодействия [2–4], а также транспорта энергии в проводнике путем баллистического разлета горячих электронов и электронной теплопроводности [2, 5], проводится при низких плотностях энергии F нагревающего излучения – не выше 10 мДж · см⁻², что соответствует пиковым температурам электронного газа T_e порядка 10^4 К, то есть значительно ниже характерной температуры Ферми $T_F \sim 10^5$ К. Между тем, в случае более высоких значений $F \geq 0.1$ Дж · см⁻² (пиковые $T_e \sim T_F$) получены экспериментальные результаты [6, 7], свидетельствующие о возможности реализации другого типа электрон-решеточного взаимодействия при субпикосекундном разупорядочивании кристаллической решетки металлов (“электронное плавление”), что требует дополнительного анализа условий применимости ДТМ. Кроме того, при пиковых $T_e \sim T_F \sim 10^5$ К в скин-слое на поверхности проводника имеет место резкий градиент давления электронного газа ∇P_e , который может вызывать перераспределение плотности электроно-

го газа в скин-слое и появление двойного электрического слоя (ДЭС). Напряженность электрического поля $E = Q \nabla T_e$, возникающего вследствие термоэлектрического эффекта в ДЭС с характерной шириной $\alpha^{-1} \sim 10^{-8}$ м, определяется величиной дифференциальной термоЭДС $Q \approx 10^{-8} \cdot T \sim 10^{-3}$ В · К⁻¹ (при $T_e \sim 10^5$ К) и сравнима с внутриатомными значениями – $E_{ат} \sim 10^{11}$ В · м⁻¹. Насколько нам известно, до настоящего времени физика упомянутых явлений в проводниках в условиях их сверхбыстрого неоднородного нагрева до пиковых $T_e \sim T_F$ практически не исследовалась как в экспериментальном, так и теоретическом плане.

В настоящей работе с использованием методов эллипсометрии (методика самоотражения лазерных импульсов накачки для *s*- и *p*-поляризаций), оптической микроскопии с временным разрешением и стационарной интерференционной микроскопии изучены динамика оптических характеристик и массопереноса в скин-слое металлов (Al, Cu) и лазерно-индуцированных металлических слоев расплава полупроводников (Si, GaAs), нагреваемых лазерным импульсом накачки длительностью 100 фс.

В работе использовалась стандартная фемтосекундная лазерная установка Института лазерной и плазменной физики университета г. Эссен (Германия), аналоги частей которой – генератор, регенеративный и многопроходный усилители на кристаллах сапфира – описаны в [8]. Параметры выходного лазерного излучения, направлявшегося в каналы накачки и зондирования, составляли: длина волны излучения первой гармоники (ПГ, $\hbar\omega = 1.56$ эВ) $\lambda \approx 800$ нм, длительность импульса гауссовой формы $\tau \approx 100$ фс

¹⁾e-mail: sergeikudryashov@chat.ru

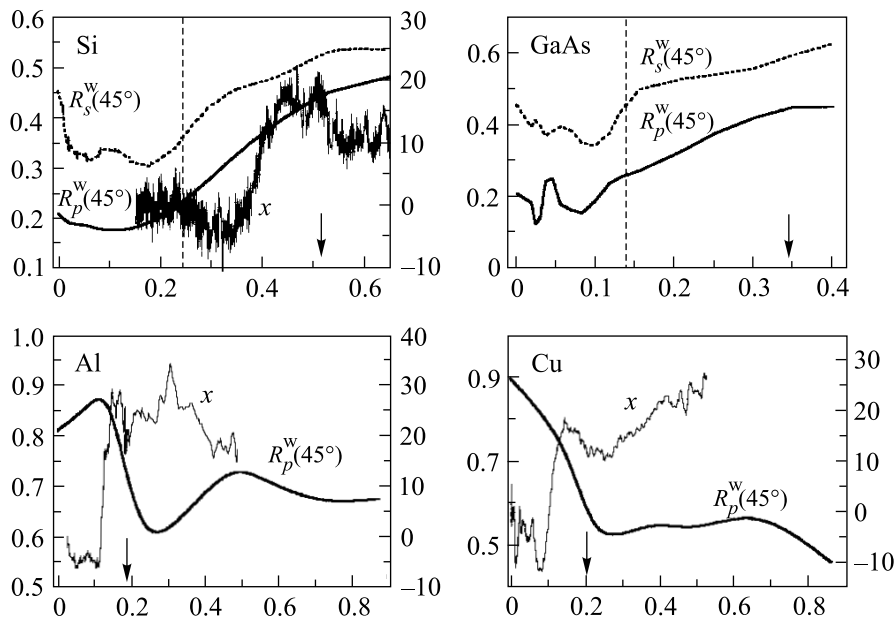


Рис.1. Зависимости коэффициента самоотражения R_s^ω и R_p^ω (левая ось ординат) от мгновенной эффективной (поглощенной) плотности энергии $F_{\text{эфф}}(t)$ накачки для образцов Cu, Al, Si и GaAs и глубины (профиля) кратера X в нанометрах (правая ось ординат) от интегральной $F_{\text{эфф}}$ для образцов Cu, Al и Si. Вертикальная пунктирная линия показывает положение порога плавления Si и GaAs в течение импульса накачки, стрелка – начало аномалии оптических свойств (плато R_s^ω и R_p^ω) для всех образцов

(FWHM), энергия импульса (TEM_{00}) – 1.5 мДж, частота следования импульсов – 10 Гц, относительная амплитуда паразитных импульсов – не более 5–7%. В канале накачки фокусированное линейно (s или p) поляризованное излучение ПГ под углом 45° направлялось на мишень, перемещавшуюся от импульса к импульсу. Энергия зеркально-отраженного излучения ПГ для s - и p -поляризаций измерялась с помощью пирозлектрического детектора при различных значениях падающей энергии одиночных импульсов. В качестве мишеней использовались пленки Al и Cu (толщиной 30–40 нм) на стекле, а также оптически “толстые” металлические пленки расплава l -Si или l -GaAs толщиной до 20 нм, получаемые на поверхности объемных нелегированных образцов данных материалов (ориентация $[100]$) под действием и в течение того же импульса накачки с эффективной плотностью энергии $F_{\text{эфф}}$ на образце значительно выше порога нетермического плавления ($F_{\text{эфф}}^M \approx 0.25 \text{ Дж} \cdot \text{см}^{-2}$ [9] и $0.15 \text{ Дж} \cdot \text{см}^{-2}$, соответственно). В канале зондирования после оптической линии задержки излучение ПГ удваивалось по частоте, далее полученная вторая гармоника (ВГ, $\hbar 2\omega = 3.12 \text{ эВ}$) использовалась при нормальном падении для зондирования через объектив оптического микроскопа участка мишени, возбужденного излучением ПГ. Изображения мишени в зеркально-отраженном излучении пробной ВГ

регистрировались синхронизированной CCD камерой для ряда задержек пробного импульса относительно импульса накачки и после нормировки на изображение невозбужденного образца и калибровки представляли собой двумерное распределение коэффициента отражения $R^{2\omega}$ образца, симметричное относительно центра пятна излучения накачки. Характеристики канала зондирования позволяли исследовать динамику изменения отражательной способности мишени с пространственным разрешением 2 мкм и временным разрешением около 100 фс. Морфология и профили глубины X кратеров, образующихся на поверхности мишеней под действием излучения накачки, изучались с помощью стационарной интерференционной микроскопии с разрешением в глубину до 2 нм.

Для всех указанных образцов экспериментально исследовались зависимости коэффициента самоотражения p -поляризованного излучения накачки (для Si и GaAs – также s -поляризованного) от его энергии. Полученные зависимости коэффициента самоотражения излучения накачки R_p^ω (для Si и GaAs – R_p^ω и R_s^ω) от энергии импульса накачки были обработаны с целью устранения пространственного усреднения этого коэффициента вследствие неоднородности распределения плотности энергии F в световом пятне моды TEM_{00} на мишени. Для устранения усреднения величин R_p^ω и R_s^ω по времени в пределах дли-

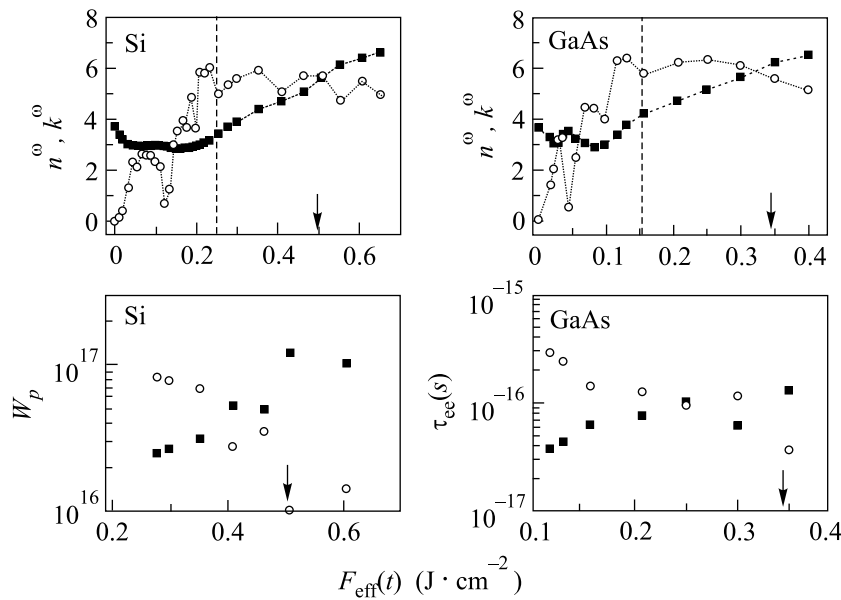


Рис.2. Зависимости оптических констант n^ω (темные квадраты) и k^ω (светлые кружки), а также ω_p (темные квадраты) и τ_{ee} (светлые кружки) от $F_{\text{eff}}(t)$ для образцов Si и GaAs (аналогичные оси для обоих образцов совмещены). Вертикальная пунктирная линия показывает положение порога плавления Si и GaAs в течение импульса накачки, стрелка – начало аномалии оптических свойств ($n^\omega > k^\omega$, резкое изменение ω_p и τ_{ee}) для указанных образцов

тельности лазерного импульса, зависимости R_P^ω и R_S^ω от $F_{\text{eff}} = (1 - R_{S,P}^\omega) \cdot F$ были подвергнуты дополнительной процедуре графической обработки [9]. Напомним, что в основе упомянутой процедуры лежит предположение о зависимости величин R_S^ω и R_P^ω от вложенной в течение лазерного импульса мгновенной эффективной плотности $F_{\text{eff}}(t)$, а не интенсивности $I_{\text{eff}}(t)$, что достаточно справедливо при воздействии на металлы сверхкоротких импульсов с умеренными значениями $F_{\text{eff}} \leq 1 \div 10 \text{ Дж} \cdot \text{см}^{-2}$. Результирующие зависимости $R_S^\omega(F_{\text{eff}}(t))$ и $R_P^\omega(F_{\text{eff}}(t))$ представлены на рис.1.

Приведенные зависимости $R_P^\omega(F_{\text{eff}}(t))$ свидетельствуют, что при воздействии на все типы металлических пленок излучения с характерной $F_{\text{eff}}^1(t) \approx 0.2 \text{ Дж} \cdot \text{см}^{-2}$ (далее – F_{eff}^1 , причем для *l*-Si и *l*-GaAs – считая от порога плавления) наблюдается плато величины R_P^ω в диапазоне значений $0.5 \div 0.6$. Аналогичный эффект ранее наблюдался для лазерноиндуцированной расплава пленок Al и Ag при близких значениях F_{eff} и объяснялся в рамках ДТМ значительным уменьшением характерного времени электрон-электронного рассеяния τ_{ee} – до 10^{16} с – при нагреве электронной подсистемы до 10^5 K [6]. Вместе с тем, отмечаемая на рис.1 особенность зависимостей $X(F_{\text{eff}})$ вблизи F_{eff}^1 – резкое уменьшение глубины кратера до ширины скин-слоя – указывает на более сложный характер процессов, происходящих в

скин-слое проводника при таких высоких степенях нагрева.

С использованием полученных в работе зависимостей $R_S^\omega(F_{\text{eff}}(t))$ и $R_P^\omega(F_{\text{eff}}(t))$ для проводящих пленок *l*-Si и *l*-GaAs были изучены их оптические характеристики n^ω и k^ω вблизи F_{eff}^1 (рис.2). Расчеты проводились по формулам Френеля путем подбора пар значений n^ω и k^ω , обеспечивающих минимальную невязку экспериментальных и расчетных значений R_S^ω и R_P^ω . Для указанных образцов выше порога плавления отмечается непрерывный рост величины $n^\omega(F_{\text{eff}}(t))$ при постоянстве k^ω , что указывает на неоднородность (эффективный характер) оптических свойств вещества в пределах скин-слоя. В то же время, превышение $n^\omega > k^\omega$ при $F_{\text{eff}}(t) \geq F_{\text{eff}}^1$ означает, что в пределах скин-слоя появляется диэлектрическая фаза с положительной величиной действительной части диэлектрической проницаемости. С целью выяснения природы наблюдаемых аномалий с использованием эффективных значений n^ω и k^ω были получены соответствующие зависимости эффективных значений плазменной частоты ω_p и τ_{ee} от $F_{\text{eff}}(t)$ (рис.2), показывающие, что при $F_{\text{eff}}(t) \geq F_{\text{eff}}^1$ происходит резкий рост ω_p и падение τ_{ee} . Поскольку для *l*-Si и *l*-GaAs измеренная оптическая масса электрона равняется единице, то наблюдаемый в настоящей работе значительный монотонный рост $\omega_p(F_{\text{eff}}(t))$ можно связать с соответствующим ростом эффективной

плотности электронов N_e в скин-слое, а следовательно, и эффективной энергии Ферми E_{F0} (рис.3). Падение $\tau_{ee}(F_{\text{eff}}(t))$ при $F_{\text{eff}}(t) \geq F_{\text{eff}}^1$ можно объяснить в рамках теории ферми-жидкости [10] ростом ω_p и T_e (рис.3), причем последняя, как и соответствующие постоянные электрон-электронного рассеяния K_{ee} (2.5 и 1.5 фс $^{-1} \cdot \text{эВ}^{-2}$ для l -Si и l -GaAs, соответственно), рассчитывались согласно выражениям

$$\tau_{ee} = K_{ee}^{-1} \frac{1 + \exp[(\hbar\omega/kT_e)]}{(\pi kT_e)^2 + (\hbar\omega)^2}, \quad (1)$$

$$K_{ee} = C \cdot \omega_p / E_{F0}^2 \quad (2)$$

с использованием полученных в работе зависимостей ω_p и E_{F0} от $F_{\text{eff}}(t)$ (рис.2,3) и подгоночного параметра C , оцениваемого при $F_{\text{eff}}(t) \approx F_{\text{eff}}^M$ (то есть при $T_e \approx 0$).

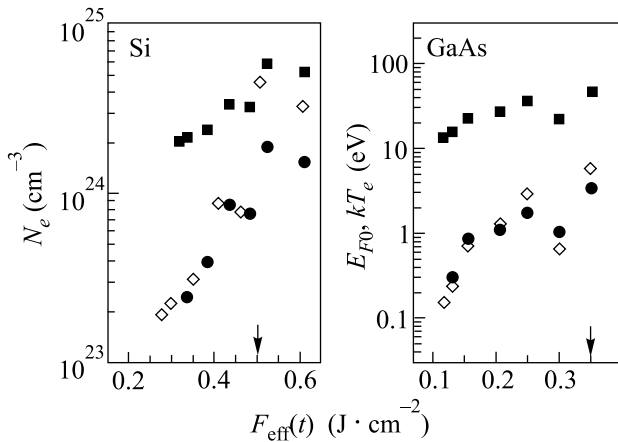


Рис.3. Зависимости N_e (светлые ромбы), E_{F0} (темные квадраты) и kT_e (темные кружки) от $F_{\text{eff}}(t)$ для образцов Si и GaAs (аналогичные оси для обоих образцов совмещены). Стрелка показывает порог появления аномалии N_e , E_{F0} и kT_e для Si и GaAs в течение импульса накачки

Зависимости N_e , E_{F0} и T_e от $F_{\text{eff}}(t)$ (рис.3) показывают, что, несмотря на значительный рост T_e в течение импульса накачки, вырождение электронного газа в скин-слое металлических пленок l -Si и l -GaAs сохраняется вследствие роста его эффективной плотности N_e , который, по-видимому, имеет термоэлектрическую природу [11]. Так, с ростом $T_e(F_{\text{eff}}(t))$ в скин-слое пленок l -Si и l -GaAs возникают градиенты температуры ∇T_e и давления электронного газа ∇P_e , где

$$P_e(T_e) = 2/5 \cdot N_e \cdot E_{F0} \cdot [1 + 5\pi^2/12(kT_e/E_{F0})^2 + \dots]. \quad (3)$$

В скин-слое на длине градиента ∇P_e происходит дрейфовый перенос электронного газа, причем по ме-

ре смещения распределения N_e от поверхности образца происходит смещение в глубь скин-слоя “эффективной поверхности” последнего, то есть поверхности максимального энерговыделения, и обострение ∇P_e . Это приводит к еще более быстрому, по сравнению с лежащими глубже слоями движущегося распределения N_e , смещению в глубь скин-слоя его “эффективной поверхности”, обострению ∇P_e и дальнейшему уменьшению реальной ширины скин-слоя, то есть сжатию электронного газа и соответствующему росту локального коэффициента поглощения. Очевидно, что задний фронт распределения N_e , смещающегося в объем под действием ∇P_e , распространяется быстрее его переднего фронта, постепенно порождая нестационарную “ударную” волну P_e с сжатием электронного газа на ее переднем фронте. Экспоненциальный характер нарастания зависимостей N_e , E_{F0} и T_e от мгновенной $F_{\text{eff}}(t)$ (рис.3), представляющих собой набор мгновенных значений данных параметров в течение лазерного импульса, подтверждает предложенную выше нестационарную картину явления. Вместе с тем, очевидно, что при распространении такой волны с ростом N_e увеличение степени экранирования ионов электронным газом приведет к насыщению поглощения на “эффективной поверхности” скин-слоя при величине N_e^{max} и дальнейшая эволюция “ударной” волны при наличии лазерного излучения будет происходить за счет увеличения пространственной ширины скачка уплотнения с амплитудой N_e^{max} и, по-видимому, образования универсального “плазменного зеркала”, наблюдавшегося для широкого круга материалов при $I \approx 10^{15} \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ [12]. Заметим, что в настоящей работе для пленки l -Si достигается двадцатикратное уплотнение электронного газа без каких-либо признаков насыщения зависимости $N_e(F_{\text{eff}}(t))$ (рис.3).

Очевидно, что по мере пробега “ударной” волны P_e в пределах скин-слоя может образоваться ДЭС из “поверхностного” слоя положительно заряженных ионов и “подповерхностного” слоя сверхплотного и “холодного” вырожденного электронного газа (рис.3). Толщина слоя ионов с плотностью N_i и зарядовым состоянием z_i , а также электронного слоя оценивается из условия электронейтральности $z_i \cdot N_i \cdot l_i \approx (N_e - N_e^0) \cdot l_e$, где $l_i + l_e \approx \alpha^{-1}$ и $N_e^0 \approx 2 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3}$ – равновесная плотность электронов для пленок l -Si и l -GaAs. Для средней объемной плотности энергии в скин-слое при $F_{\text{eff}}(t) \approx F_{\text{eff}}^1$ около $10 \text{ эВ} \cdot \text{атом}^{-1}$, близкой к величине первого потенциала ионизации атомов Si, Ga, As, Al и Cu (8.2, 6.0, 9.8, 6.0 и 7.7 эВ [13]), имеем $l_e \approx \alpha^{-1} \cdot N_e^0 / N_e$ и $l_i \approx \alpha^{-1}(1 - N_e^0 / N_e)$, где N_e / N_e^0 – фактор уплотнения слоя электронного газа.

При достигнутых в работе уплотнениях электронного газа около $10 \div 20$ величина l_e составляет ~ 1 нм и уменьшается с ростом N_e , тогда как l_i возрастает, соответственно, до α^{-1} . Для $F_{\text{эф}}(t) \approx F_{\text{эф}}^1$ непосредственно после окончания импульса накачки напряженность внутреннего электрического поля ДЭС составляет согласно уравнению Пуассона $E \approx eN_i l_i / \epsilon_0 \approx 10^{13} \text{ В} \cdot \text{м}^{-1}$ (разность потенциалов $\Delta\varphi \approx 10^5 \text{ В}$), что качественно согласуется с экспериментальными данными [14] по регистрации углеродных ионов с энергиями до 10 кэВ при близких плотностях энергии накачки, учитывая быстрое снижение $\Delta\varphi$ после окончания нагревающего импульса вследствие релаксационных процессов в ДЭС.

Для $F_{\text{эф}}(t) \geq F_{\text{эф}}^1$ в течение первой пикосекунды после импульса накачки отмечается падение величины $R^{2\omega}$ для пленок Cu и Al и ее рост для пленки l-Si (рис.4), обусловленные, по-видимому, удалением нагретого скин-слоя пленок металлов и расплава с по-

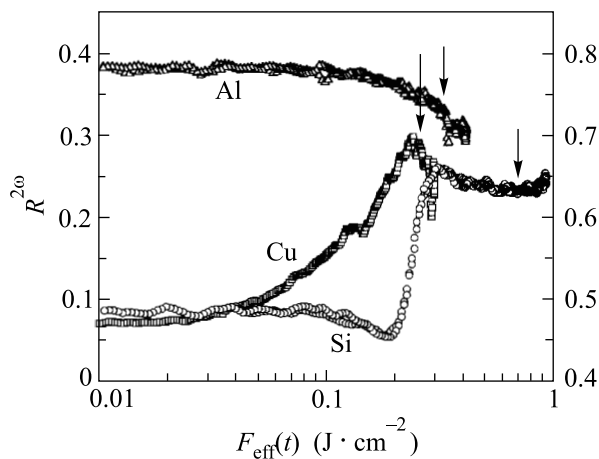


Рис.4. Зависимости коэффициента отражения $R^{2\omega}$ ($\hbar 2\omega = 3.12 \text{ эВ}$, нормальное падение) от эффективной плотности энергии $F_{\text{эф}}$ накачки для образцов Al, Si (правая ось ординат) и Cu (левая ось ординат) и задержек от начала импульса накачки соответственно 0.3, 0.5 и 0.5 пс. Стрелка показывает положение порога субпикосекундного расширения двойного электрического слоя для указанных образцов

верхности возбужденного кремния. То есть, благодаря внутреннему электрическому полю разрушение ДЭС происходит путем “разгрузки” (кулоновского взрыва) неустойчивого поверхностного слоя положительных ионов, а уплотнение электронного газа исчезает вследствие межэлектронного отталкивания и электронной теплопроводности. Сравнение значений X при $F_{\text{эф}}(t) \approx F_{\text{эф}}^1$ (рис.1) и ширины скин-слоя α^{-1} (8–12 нм) для пленок l-Si, Cu и Al показывает, что

время разрушения ДЭС, ограничивающее продолжительность процесса переноса энергии из скин-слоя в объем образца, достаточно мало для сохранения практически всей поглощенной энергии лазерного излучения в плазме ДЭС.

Таким образом, на основании полученных в настоящей работе экспериментальных данных выдвинуто предположение, что при сильном неоднородном нагреве скин-слоя проводящих материалов в течение лазерного импульса накачки в нем распространяется “ударная” волна электронного давления, создающая тонкий слой сверхплотного ($10^{23} - 10^{25} \text{ см}^{-3}$) вырожденного электронного газа в области границы скин-слоя под “поверхностным” слоем положительных ионов. Возникающий при этом поверхностный двойной электрический слой разрушается вследствие кулоновского взрыва и электронной теплопроводности в течение одной пикосекунды.

Авторы выражают признательность Д. фон дер Линде, К. Соколовски-Тинтену и В. В. Темнову за помощь в организации и проведении экспериментов, Немецкой службе академических обменов – за частичную поддержку работы (стипендия 2000 г. для СИК).

1. С. И. Анисимов, Б. Л. Капелиович, Т. Л. Перельман, *ЖЭТФ* **66**, 776 (1974).
2. R. H. M. Groeneveld, R. Sprik, and A. Lagendijk, *Phys. Rev.* **B51**, 11433 (1995).
3. V. E. Gusev and O. B. Wright, *Phys. Rev.* **B57**, 2878 (1998).
4. M. Bonn, D. N. Denzler, S. Funk et al., *Phys. Rev.* **B61**, 1101 (2000).
5. C. Suarez, W. E. Bron, and T. Juhasz, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4536 (1995).
6. X. Y. Wang and M. C. Downer, *Opt. Lett.* **17**, 1450 (1992).
7. C. Guo and A. J. Taylor, *Phys. Rev.* **B62**, 5382 (2000).
8. C. Rulliere (Ed.), *Femtosecond laser pulses: principles and experiments*, Berlin Heidelberg, Springer-Verlag, 1998.
9. С. И. Кудряшов, В. И. Емельянов, *ПЖЭТФ* **73**, 263 (2001).
10. D. Pines, *The theory of quantum liquids*, Ed. W. A. Benjamin, New York, 1966.
11. А. А. Абрикосов, *Введение в теорию нормальных металлов*, М.: Наука, 1972, гл.6.
12. D. F. Price, R. M. More, R. S. Walling et al., *Phys. Rev. Lett.* **75**, 252 (1995).
13. И. С. Григорьев, Е. З. Мейлихова (ред.), *Физические величины*, М.: Энергоатомиздат, 1991, гл.19.
14. H. Köster and K. Mann, *Appl. Surf. Sci.* **109/110**, 428 (1997).