

ПРОБЛЕМИ МОДЕЛЮВАННЯ ЗМІШАНИХ ПРОЦЕСІВ РЕЛАКСАЦІЙНОЇ ОПТИКИ

Петро ТРОХИМЧУК, Михайло ПЕНЬКОВСЬКИЙ

Волинський національний університет імені Лесі Українки,
просп. Волі 13, Луцьк 43021

Редакція отримала статтю 10 лютого 2010 р.

Наведено результати моделювання змішаних процесів релаксаційної оптики фізико-хімічними методами нелінійного моделювання. Як об'єкт моделювання обрано процеси взаємодії імпульсного лазерного випромінювання з напівпровідниками (антимонідом і арсенідом індію та кремнієм). Отримано задовільне пояснення експериментальних результатів.

1. ВСТУП

Релаксаційна оптика – розділ фізики, що описує процеси незворотної, зокрема неадиабатичної, взаємодії оптичного випромінювання з твердими тілами. Цей розділ фізики виник на межі квантової електроніки, фізики твердого тіла, ядерної фізики, фізичної оптики, фізики фазових переходів тощо [1–4]. Отже, релаксаційну оптику можна вважати як розділом радіаційної фізики твердого тіла, так і розділом фізичної оптики.

Під незворотною взаємодією розуміємо таку взаємодію, коли після завершення взаємодії в фізичному середовищі відбулися такі зміни, після яких воно (середовище) не в змозі релаксувати (повернутися) в попередній стан. Такі явища не можна пояснювати якоюсь окремою з найбільш поширених фізичних теорій, бо через опромінення в опромінену об'єкті може виникати декілька фаз, як послідовно так і одночасно.

Ці процеси слід розглядати з точки зору насичення збудження відповідних хімічних зв'язків опромінюваного матеріалу [3,4]. Це дає змогу знайти співвідношення між випромінювальною та безвипромінювальною релаксацією й пояснити з єдиної точки зору ефекти як квантової електроніки та нелінійної оптики, так і релаксаційної оптики. Покажемо, як можна пояснити результати незворотної взаємодії оптичного випромінювання з напівпровідниками, виходячи саме з цих міркувань.

2. ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ПОЯСНЕННЯ

Розглядаючи незворотну взаємодію лазерного випромінювання з твердими тілами часто “забувають” або просто нехтують процесами, які передують розплаву та розпиленню матеріалу [5,6].

Водночас “захоплення”, скажімо, квантово-механічною теорією твердого тіла призводить до пояснень експериментальних результатів з точністю до навпаки [1,2,7,8]. У [8] докладно проаналізовані й промодельовані результати лазерного руйнування матеріалів, пов’язані з багатофотонною та ударною іонізацією, а також механізми, пов’язані з нагріванням дефектів, що поглинають випромінювання.

Усі ці ефекти так чи інакше пов’язані з процедурою насичення збудження. Отже, варто було б розглядати ці результати саме з цієї точки зору. Але для цього потрібно насамперед вибудувати енергетично-часову ієрархію збуджень, які зумовлюють відповідні фізичні явища. Наприклад, при поглинанні в області власного поглинання вже не справджується принцип Франка–Кондона [10], тому поряд із випромінювальною адіабатичною релаксацією при опроміненні з $h\nu > 0,95E_g$, суттєвими стають процеси, пов’язані з неадіабатичною релаксацією. Позаяк маємо справу з процесами насичення, стає зрозумілим чому використовуються термодинамічні підходи для пояснення відповідних явищ як відновлення структури (лазерний відпал іонно-імплантованих шарів), так і руйнування, включаючи лазерне легування твердих тіл. Усі ефекти насичення можна охарактеризувати ефективною температурою [11]. Цей параметр відіграє важливу роль у астрофізиці. Причому існує набір температур, залежно від того, за яким законом вони визначаються. Але на відміну від астрофізичних досліджень у релаксаційній оптиці, включаючи процеси руйнування, стикаємося з нестационарними та нерівноважними процесами. Тут температура зазвичай не вимірюється, а визначається з рівняння теплопровідності, тобто вона є динамічним параметром. Зрозуміло також чому в процесах незворотної взаємодії лазерного випромінювання використовуються термодинамічні моделі. Інтегральні потоки випромінювання імпульсних лазерів вимірюються на приладах, приймачами випромінювання яких є, як правило, конусні поглиначі, що працюють за принципом абсолютно чорного тіла. Отже природно запитати, що ж маємо розуміти під поняттям температури при незворотній взаємодії лазерного випромінювання, включаючи імпульсне, з твердими тілами.

Розглянемо явища насичення з трохи іншої точки зору. При збільшенні інтенсивності накачування лазерів відбувається зрив генерації випромінювання на даній частоті, а при подальшому збільшенні настає ефект хаотизації лазерного випромінювання [11], тобто генерація випромінювання на всьому дискретному спектрі інших частот. Для газових лазерів це не є великою проблемою, оскільки в потужних лазерах проходить або прокачування газу через робочу зону лазера, або він перебуває при відповідному тиску. При значному збільшенні інтенсивності збудження відбувається або багатофотонна, або ударна фотоіонізація, що призводить до появи ліній випромінювання, як правило, з більшими частотами, які можуть відповідати переходам збуджених атомів газу в основний стан. Маючи газовий молекулярний лазер, який працює на коливних переходах, при значному збільшенні інтен-

сивності збудження, можемо отримати спектр ліній, які відповідають не лише коливним, а й електронним переходам. Однак газ не перестає бути газом. При цьому, як правило, про температуру не йдеться, бо активне газове лазерне середовище є низькотемпературною плазмою, хоча й можна ввести такий параметр як ефективна температура.

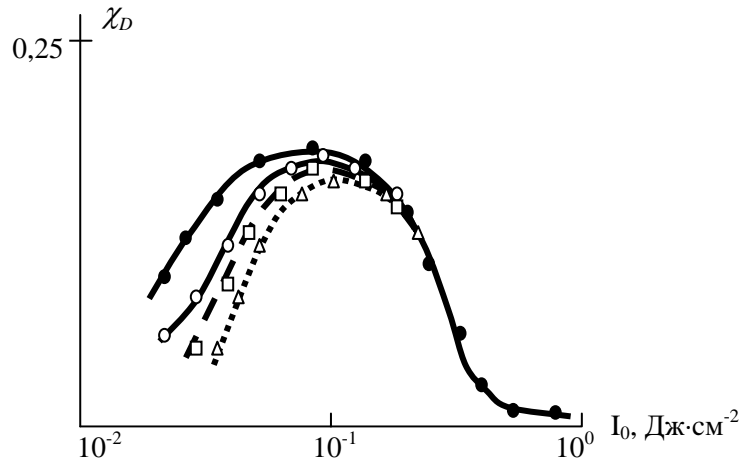


Рис. 1. Динаміка поведінки дефектів у InSb після опромінення імпульсами рубінового лазера: ● – 2-4 години після опромінення; ○ – 48 годин після опромінення; □ – тиждень після опромінення; △ – 2 тижні після опромінення.

При лазерному опроміненні антимоніду індію імпульсами рубінового лазера тривалістю 20 нс виникають атомні зміщення, які реєструються навіть методом оберненого резерфордівського розсіювання протонів з енергією 500 кеВ (рис.1). Як бачимо з рисунка ці дефекти (зміщення) при низьких густинах опромінення можуть “відпалюватися” і при кімнатній температурі, тобто з часом зникають, а при більших густинах енергії зберігаються. Останній ефект пояснюється тим, що при взаємодії лазерного випромінювання з $h\nu \geq E_g$ відбувається інтенсивне дефектоутворення. Причому концентрація дефектів і час їхнього життя суттєво залежить від інтенсивності їх уведення, тобто від інтенсивності опромінення.

При подальшому підвищенні інтенсивності опромінення ці зміщення зменшуються до порога чутливості методу оберненого резерфордівського розсіювання (концентрації міжканалових атомів 10^{18} см^{-3}). Слід зазначити, що цим зміщенням відповідають донорні центри, концентрація яких корелює з концентрацією зміщених атомів [1,2]. Зі збільшенням інтенсивності опромінення до $0,22 - 0,26 \text{ Дж/см}^2$ на поверхні опроміненого матеріалу утворюється п'ять фаз: три кристалографічні, полікристалічна та аморфна [1,2]. При інтенсивності опромінення $0,3 \text{ Дж/см}^2$ поверхня руйнується [1,2]. Подібні результати отримані і для арсеніду індію при опроміненні тим же лазером при енергетичних характеристиках опромінення в 1,6 разів більших, ніж для антимоніду індію [1,2].

Як бачимо з рис. 1, ці ефекти мають чітко виражений ефект насичення та різні часи релаксації. Тобто можна припустити, що поява та еволюція донорних центрів і обірваних зв'язків [1,2,13] відбуваються поетапно. В [3,4] ці результати пояснені на основі двовимірної ґратки сфалериту (рис.2). Як ієрархію насиченості збудження напівпровідника обрали відповідні три хімічні зв'язки.

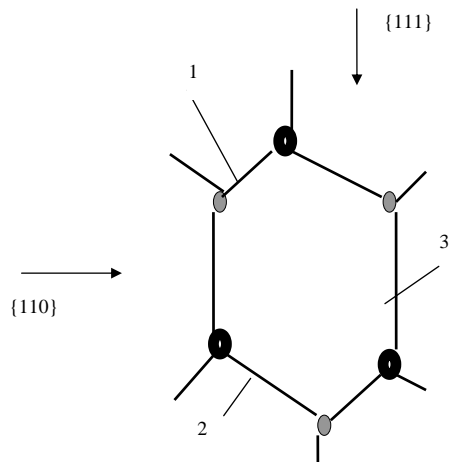


Рис. 2. Двовимірне представлення кристалічної ґратки A_3B_5 модифікації сфалериту (включаючи InSb та InAs). Зв'язок 1 – чисто ковалентний.

Зв'язок 1 чисто ковалентний і відповідає ширині забороненої зони напівпровідника, бо кристали цієї модифікації прямозонні. Для антимоніду індію це значення становить 0,18 еВ, енергія зв'язку 2 дорівнює 1,95 еВ, а зв'язку 3 – 2,15 еВ.

Насичення збудження зв'язку 1 відповідає лазерному випромінюванню з цього зв'язку з енергією кванта, що дорівнює ширині забороненої зони напівпровідника. Для випадку опромінення антимоніду та арсеніду індію випромінюванням рубінового лазера маємо оптичне накачування відповідного напівпровідникового лазера рубіновим лазером. У цьому випадку імпульси напівпровідникового лазера за тривалістю більші ніж імпульси лазера накачування [4]. Їх тривалість залежить від довжини хвилі опромінення. Що менша довжина хвилі опромінення, то більша тривалість імпульсу випромінювання напівпровідникового лазера. Цю залежність можна оцінити як час адіабатичної релаксації [2] за допомогою співвідношення

$$\tau_{ar} = \tau_{ex} \cdot \exp\left(\frac{h\nu}{E_g}\right), \quad (1)$$

де τ_{ex} – час оптичного збудження одного зв'язку може бути визначений із принципу невизначеності. Для антимоніду індію, опроміненого випромінюванням рубінового лазера, цей час становить $8,1 \cdot 10^{-11}$ с.

Час неадіабатичної релаксації можна визначити за допомогою співвідношення [3, 4]

$$\tau_{nr1} = \tau_{ex} \cdot \exp\left(\frac{h\nu}{E_g} + \frac{E_g}{kT}\right). \quad (2)$$

Для нашого режиму опромінення антимоніду індію цей час становить $1,1 \cdot 10^{-7}$ с. Оскільки неадіабатична релаксація суттєва при опроміненні напівпровідників з енергією кванта $h\nu \geq 0,95 E_g$, то тривалість імпульсу напівпровідникового лазера на антимоніді індію з накачуванням рубіновим лазером має бути співмірна з часом неадіабатичної релаксації $1,1 \cdot 10^{-7}$ с. Для зменшення цього часу можна зменшити і енергію кванта збуджувального випромінювання. При опроміненні з $h\nu \sim E_g$ час неадіабатичної релаксації для антимоніду індію становитиме $\sim 10^{-11}$ с, для арсеніду $\sim 10^{-12}$ с. Ці оцінки підтверджують правомочність оптичного накачування напівпровідникових лазерів фемтосекундними лазерними імпульсами: при цьому напівпровідникові лазери випромінюють пікосекундні імпульси [4].

Насичення інтенсивності збудження відповідних хімічних зв'язків оцінювали, виходячи з теорії каскадних процесів і прямим фізико-хімічним методом. Для зв'язків 2 та 3 (рис.2) обчислено й відповідні часи релаксації, виходячи з геометричних і енергетичних міркувань. Задовільне узгодження з експериментом дав прямий метод.

Відповідно до представленої моделі ієрархії насичення збуджень відповідних хімічних зв'язків можна класифікувати відповідні фізичні ефекти.

Зв'язок 1 – оптичне накачування напівпровідникових лазерів, дроблення кванта випромінювання [1–4,9,12].

Зв'язок 2 – лазерне легування [1–4], зрив лазерної генерації [1,2,9,12]. Окрім того, це може бути доповненням до критеріїв Ліндемана та Зейтца як кінетичний критерій утворення дефектів при оптичному насиченому збудженні. Слід зазначити, що цей критерій може бути перенесений і адаптований для тривимірного випадку.

Зв'язок 3 – гідродинамізація опромінюваного кристала [4], “холодне плавлення” напівпровідника фемтосекундними лазерними імпульсами [9], хаотизація лазерного випромінювання [12], лазерна рекристалізація [1,2], виникнення нових фаз, включаючи надґратки і надструктури [1,2].

Зокрема, хаотизація лазерного випромінювання тісно зв'язана як з рекристалізацією так і з утворенням нових фаз. При підвищенні інтенсивності лазерного опромінення більш ніж потрібно для розриву всіх трьох зв'язків (двовимірна ґратка антимоніду індію) відбувається рекристалізація опроміненого матеріалу. При цьому система напівпровідник переходить з вищого метастабільного стану в нижчий стабільний, і може утворюватись до п'яти фаз (антимонід індію після опромінення імпульсом рубінового лазера тривалістю 20 нс з густиною енергії 0,22–0,24 Дж/см²), три з яких кристалічні. Утворення цих структур відповідає спектру випромінювання, який називають хаотизацією лазерного випромінювання.

Розглянутий метод є ефективним методом нелінійного моделювання в релаксаційній оптиці і дає змогу з єдиної позиції підійти до проблеми

випромінювальної та безвипромінювальної релаксації (ефекти нелінійної та релаксаційної оптики).

При збільшенні інтенсивності опромінення до більш ніж $0,16 \text{ Дж/см}^2$ для антимоніду індію потрібно використовувати модельні представлення, наведені в [5,6,14]. Причому фазони Стафеева [14] можуть бути представлені як квантові точки для зародків кристалізації в моделі, наведеній у [5,6]. Цей метод можна використати і при більш детальному аналізі процесів, які передують процесам лазерного руйнування, пов'язаним з ударною та багатофотонною іонізацією [5,6].

3. ВИСНОВКИ

Проаналізовані методологічні аспекти релаксаційної оптики з точки зору насичення збудження відповідних станів (хімічних зв'язків).

Показано, що поряд з термодинамічними параметрами, які доволі важко визначити для процесів незворотної взаємодії лазерного випромінювання з твердими тілами потрібно враховувати кінетичні параметри взаємодії.

Наведена модель послідовної ієрархії збудження хімічних зв'язків у антимоніді індію, яка дає змогу пояснити експериментальні результати незворотної взаємодії імпульсного випромінювання рубінового лазера з тривалістю імпульсу 20 нс .

Побудований і аналізується відповідний ланцюжок часів релаксації, який задовільно пояснює як процеси випромінювальної релаксації (генерація лазерного випромінювання), так і безвипромінювальної релаксації (утворення дефектів і процеси плавлення та руйнування при поверхневого шару).

Показано, що в межах даної моделі є суттєве доповнення до критеріїв Зейтца та Ліндемана щодо утворення дефектів у кристалі. Для утворення дефектів у антимоніді індію досить розірвати два з трьох зв'язків у режимі насичення збудження.

Ефект зриву лазерної генерації з довжиною хвилі, що дорівнює ширині забороненої зони опроміненого матеріалу, має не тепловий, а іонізаційний характер.

Хаотизація лазерного випромінювання відповідає ефектам відновлення кристалічної структури і тому має цілий спектр випромінювання, інтенсивність якого задається числом відповідних відновлених кристалічних зв'язків.

ЛІТЕРАТУРА

- [1] *Trokhimchuk P.P.* Foundation of Relaxed Optics. Lutsk: Vezha, 2006. 294 с.
- [2] *Трохимчук П.П.* Радіаційна фізика твердого тіла. Луцьк: Вежа, 2007. 394 с.
- [3] *Trokhimchuk P.P.* Phase transformations and transitions in relaxed optics and its possible applications. Proc. CAOL 2008, Alushta, 2008. 273–275.

- [4] *Трохимчук П.П.* Некоторые особенности моделирования смешанных эффектов релаксационной оптики. Лазерная и оптико-электрон. техника. Минск, 2008. 38–47.
- [5] *Шмаков В.А.* Силовая оптика. М.: Наука, 2004. 318 с.
- [6] *Токарев В.Н., Фомич В.Ю., Шмаков В.А., Ямщиков В.А.* Формирование наноструктур при лазерном плавлении поверхности твердых тел. Докл. РАН, **419**, №6. 754–758.
- [7] *Капаев В.В., Капаев Ю.В., Молотков С.Н.* Нетепловой механизм лазерного отжига полупроводников и образование сверхструктуры. Микроэлектроника. 1983. **12**, вып.6. 499–511.
- [8] *Маненков А.А., Прохоров А.М.* Лазерное разрушение прозрачных твердых тел. Успехи физ. наук. 1986. **148**, вып. 1. 179 – 211.
- [9] *Boyd R. W.* Nonlinear Optics, 2-nd ed. Amsterdam a.o.: Academic Press, 2003. 526 p.
- [10] *Трохимчук П.П.* Проблема адиабатичності та принцип Франка–Кондона у фізиці твердого тіла та релаксаційній оптиці. Вісн. ВНУ ім. Лесі Українки, 2008. №9. 62–67.
- [11] *Астрономічний енциклопедичний словник.* Львів: ЛНУ ім. І.Франка, 2003. 548 с.
- [12] *Хакем Г.* Лазерная светодинамика. М.: Мир, 1988. 350 с.
- [13] *Wautelet M., Faily-Lovatto M., Laude L.D.* Dangling bonds in Si and Ge during laser irradiation. Phys.C.:Sol.-St.Phys. 1980. **13**. 5505–5514.
- [14] *Стафеев В. И.* Элементарные структурные единицы конденсированных фаз и связанные с их электрическим зарядом явления. Прикладная физика, 2005. №4. 31–38.

PROBLEMS OF MODELLING THE MIXED PROCESSES OF RELAXATIONAL OPTICS

Petro TROKHIMCHUCK, Mykhaylo PEN'KOVSKIY

Lesya Ukrainka Volyn' National University,
Voly av., 13, Lutsk, 43021, Ukraine

The results of modelling the mixed processes of Relaxational Optics using nonlinear physical and chemical methods are analyzed. The processes of the interaction laser radiation with semiconductors (indium antimonide, indium arsenide and silicon) were selected as objects of modelling. Good agreement between experimental and modelling data has been reached.