

УДК 539.104:537.311.33:621.315.5

РЕЛАКСАЦІЙНА ОПТИКА: ПРОБЛЕМИ МОДЕЛЮВАННЯ ПРОЦЕСІВ ПЕРЕВИПРОМІНЮВАННЯ

П. Трохимчук, І. Дмитрук

*Східноєвропейський національний університет ім. Лесі Українки,
пр.Волі, 13, 43025, Луцьк, Україна
trope@univer.lutsk.ua; trope53@yahoo.com; trope@yandex.ru*

Проаналізовано проблему впливу переопромінення на формування незворотних змін у лазерно-опромінених матеріалах. Це одна з найважливіших проблем релаксаційної оптики. Виявлено відмінність ефектів перепереопромінення від ефектів радіаційно-стимульованої дифузії. Ці ефекти розглянуто на прикладі антимоніду індію. Наведено та обговорено відповідні моделі, які дають змогу описати спостережувані явища.

Ключові слова: процеси переопромінення, процеси дифузії, релаксаційна оптика, насичення збудження, лазерне легування, каскадні процеси.

Процеси перевипромінювання відіграють вирішальну роль у низці процесів як нелінійної, так і релаксаційної оптики. У разі незворотньої взаємодії оптичного випромінювання з твердими тілами ці процеси враховували зрідка. Зазвичай, це “списують” на дифузю (в більшості випадків теплову, іноді плазмову чи фотостимульовану). Між цими типами дифузії є суттєва різниця. Теплова та плазмова дифузії мають колективну (хвильову) природу та зумовлені структурними і зарядовими градієнтами, що виникають унаслідок опромінення. Фотостимульована дифузія має квантовий (локальний) характер. Усі ці типи дифузії мають безвипромінювальну природу. Процеси перевипромінювання дають змогу переносити енергію падаючого випромінювання в глибину опромінюваного матеріалу завдяки перевипромінюванню первинно поглинутого оптичного випромінювання.

І хоча з математичного погляду рівняння перенесення випромінювання та дифузії подібні [4], однак є суттєва різниця в профілях розподілу незворотних змін в опроміненному матеріалі. Для зір це не суттєво, а для отримання лазерно-індукованих субмікронних змін це відіграє визначальну роль. Проілюструємо це на прикладі антимоніду індію, опроміненого імпульсами рубінового та неодимового лазерів різної тривалості й інтенсивності.

Розрахункові та експериментальні профілі розподілу донорних центрів в антимоніді індію після опромінення одиничними імпульсами рубінового лазера тривалістю 20 нс показано на рис. 1. Як бачимо, залежно від густини енергії опромінення профілі розподілу донорних центрів, які вимірювали за допомогою ефекту Холла з поширеним втручанням, мають різну форму.

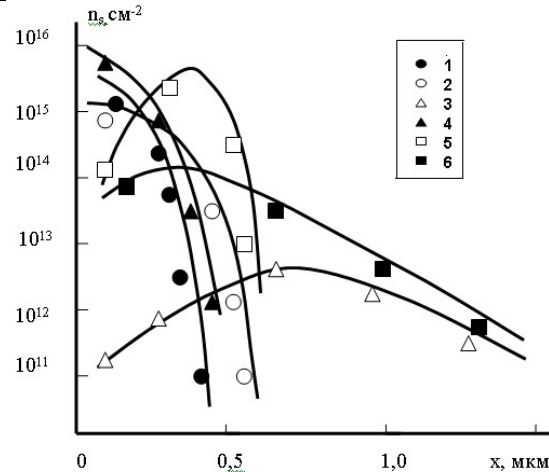


Рис. 1. Профілі розподілу шарової концентрації донорних центрів у інверсійних шарах InSb та InAs, отриманих після лазерного опромінення з різною густиною енергії в імпульсі 0,07 (1); 0,096 (2); 0,16 (3); 0,16 (4); 0,25 (5); 0,5 Дж·см⁻² (6); 1–3 –InSb, 4–6 – InAs.

На рис. 1 зображено розрахункові профілі, виконані в однодифузійному наближенні; відповідні точки відповідають експериментальним даним. Однодифузійне наближення ґрунтується на прив'язці до експериментальних даних та на умові однорідного середовища, неоднорідність включена в температурну залежність коефіцієнта дифузії донорних центрів. Дводифузійне наближення, яке ґрунтується на різній рухливості атомів індію та сурми внаслідок іонізації, дає змогу уникнути хвостів кривих 5–7 (див. рис. 1) [5]. Зазначимо, що сам процес утворення донорних центрів добре описують на основі двовимірної ґратки сфалериту за допомогою моделі послідовного каскадного збудження відповідного типу хімічних зв'язків у режимі насичення збудження [1, 2] (у цьому разі достатньо використати двовимірну ґратку сфалериту). У нашому випадку час опромінення (20 нс) значно менший від часу релаксації оптичного збудження, який був пов'язаний з часом життя нерівноважних носіїв заряду ($\sim 10^{-7}$ с) [1–3]. Найбільшу кількість дефектів дає одночасний розрив двох із трьох зв'язків за режиму насичення збудження.

Зовсім інша річ – режими опромінення з часами, значно більшими від часу життя нерівноважних носіїв. На рис. 2 зображено профілі розподілу донорних центрів в антимоніді індію, отримані в разі опромінення одиничними імпульсами рубінового лазера тривалістю 5 мс (криві 1, 2) та серіями імпульсів неодимового лазера (тривалість імпульсу – 10 нс, частота проходження імпульсів – 12,5 Гц, потужність випромінювання в одному імпульсі – 5 МВт, час опромінення $\sim (6-10)$ с, 75–125 імпульсів) [1–3].

Як бачимо, порівняно з кривими, що показані на рис. 1, у цьому разі густина енергії опромінення в 50–200 разів більша, форма профілів інша, а концентрація індукованих змін на два–три порядки менша. Пояснення цих кривих таке [1,2,6]. Очевидно, що тут великий внесок у кінцевий результат роблять ефекти вторинного перевипромінювання та тісно пов'язані з ними процеси переопромінення опромінюваного матеріалу з довжиною хвилі, що дорівнює ширині забороненої зони кристала, тобто $\sim 6,9$ мкм.

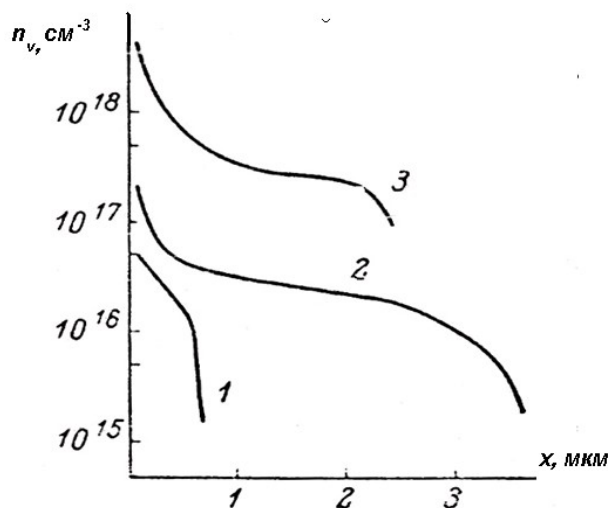


Рис. 2. Профілі об'ємного розподілу електронів після лазерного опромінення: 1, 2 – рубіновий лазер; 3 – YAG:Nd лазер. Густина енергії в імпульсі, Дж/см²: 1 – 5; 2 – 40.

Зазначимо, що коефіцієнт поглинання антимоніду індію на краю смуги власного поглинання $\sim 10 \text{ см}^{-1}$. У цьому разі один квант рубінового лазера (енергія кванта 1,78 eV) згідно з формулою [1,2,7]

$$n = 2 \ln \frac{\hbar\nu}{E_g},$$

розриває 4,3 зв'язки, а неодимового (енергія кванта – 1,17 eV) – 3,7 зв'язків. Форма кривої 1 свідчить про те, що процеси переопромінення порівняно малоінтенсивні, головно збуджується (розривається) чистий ковалентний зв'язок у представленні двовимірної кристалічної ґратки. Ймовірність розриву двох зв'язків, що й приводить власне до утворення стійких донорних центрів та пов'язаних з ними структурних змін опроміненого матеріалу, зовсім мала, і вона пов'язана з частковим просвітленням матеріалу та багатофотонним поглинанням вторинних квантів опромінення, а ймовірність розриву всіх трьох зв'язків – практично нульова [1]. Саме розрив усіх трьох зв'язків у режимі насичення збудження призводить до інтенсивної фотостимульованої дифузії донорних центрів у глибину опроміненого матеріалу [1, 2, 7]. Тобто в цьому випадку режим далекий від режиму одночасного насиченого збудження двох зв'язків.

Те, що для кривих 2 та 3 рис. 2 основними є процеси опромінення, підтверджує однаковий нахил цих кривих у їхній центральній ділянці, що приблизно відповідає нахилу кривої поглинання на краю смуги власного поглинання антимоніду індію. Більша концентрація донорних центрів у разі опромінення наносекундними імпульсами неодимового лазера зумовлена інтенсивнішим опроміненням матеріалу за часи, значно менші від часів релаксації, тобто часу життя нерівноважних носіїв.

Цей процес нагадує ті процеси перевипромінювання та перенесення випромінювання, що відбуваються в зорях [4]. У цьому випадку визначальним є оптичний Urca-процес,

тобто більша частина поглинутої енергії перетворюється у випромінювання і на незворотні зміни має значно менший вплив [1–3]. Для незворотних змін у глибині кристала потрібні багатофотонні процеси поглинання вторинного випромінювання (тобто переопромінення), і коли для досягнення товщини шарів понад 1 мкм у разі опромінення одиничними імпульсами рубінового лазера тривалістю 20 нс потрібні густини енергії 0,12–0,16 Дж/см² (див. рис. 1, криві 5–7), то для досягнення ще більших глибин у разі опромінення мілісекундними імпульсами рубінового лазера (див. рис. 2, крива 2) потрібна густина енергії 40 Дж/см², а сумарна густина енергії опромінення серією наносекундних імпульсів – 0,75–1,25 Дж/см².

Вигляд кривої 1 рис. 2 свідчить, що процеси перевипромінювання на формування незворотних змін в антимоніді індію не впливають, тобто вони малоінтенсивні та не призводять до об'ємного багатофотонного поглинання, яке й зумовлює появу донорних центрів в об'ємі опроміненого матеріалу. Однак збільшення густини енергії опромінення з 5 (див. рис. 2, крива 1) до 40 Дж/см² (див. рис. 2, крива 2) приводить до того, що процеси переопромінення відіграють вирішальну роль у формуванні незворотних змін в опроміненому матеріалі. Оцінка ефективної густини енергії опромінення за імпульс тривалістю 10⁻⁷ с з урахуванням того, що майже половина енергії зазнає відбивання, дорівнює 4·10⁻⁵·(імпульс для кривої 1 рис. 2) та 3,2·10⁻⁴ Дж/см²·(імпульс для кривої 2 рис. 2), тоді як густина енергії, потрібна для розриву одного зв'язку, дорівнює 2·10⁻³ Дж/см². Отже, ми маємо для кривої 1 0,02 розірваних зв'язків за імпульс, а для кривої 2 0,16 розірваних зв'язків за імпульс. Для кривої 3 це число ще більше – 0,5–0,8 розірваних зв'язків за імпульс.

Якщо порівняти рис. 1 і 2, то можна зробити висновок, що генерація донорних центрів одиничними наносекундними імпульсами рубінового лазера інтенсивніша, ніж у разі опромінення серіями менш інтенсивних імпульсів неодимового лазера та одиничними мілісекундними імпульсами рубінового лазера. Якщо перевести дані рис. 1 на об'ємні концентрації, то співвідношення максимумів утворених донорних центрів становитиме 10²–10⁴ від даних рис.2, а це означає, що механізми утворення цих донорних центрів різні.

Імовірність 10–11 фотонного поглинання вторинного випромінювання дуже мала, однак утворення донорних центрів з концентрацією ~ 10⁻²–10⁻⁴ атомного відсотка в приповерхневій області та ~ 10⁻⁴–10⁻⁶ атомного відсотка в об'ємі напівпровідника засвідчує, що ці процеси все-таки відбуваються. На підставі цих співвідношень можна оцінити, яка частина поглинутої енергії витрачається на 10–11 фотонне поглинання, що приводить до утворення донорних центрів в об'ємі опроміненого матеріалу. Для кривих 2 та 3 рис. 2 це значення становить ~ 10⁻² від приповерхневого значення. Оцінка густини енергії, яка потрібна для розриву двох зв'язків двовимірної ґратки сфалериту (рис. 3) у режимі насичення збудження без урахування релаксації, дає значення 0,044 Дж/см², а одного зв'язку – 0,002 Дж/см² [1, 2, 6]. Кількість “імпульсів” рубінового лазера тривалістю 10⁻⁷ с, що вміщується в тривалість імпульсу 5 мс, дорівнює 5·10⁴. Тому густина чистої енергії в імпульсі, яка витрачається на поглинання (приблизно вдвічі менша від падаючої, коефіцієнт відбивання для випромінювання рубінового лазера – 0,45), дорівнює 5·10⁻⁵ (імпульс для кривої 1 рис. 2) та 4·10⁻⁴ Дж/см²·(імпульс для кривої 2 рис. 2). Саме тому інтенсивність утворення незворотних змін в антимоніді індію у разі опромінення одиничними імпульсами мілісекундного рубінового лазера є на два–три порядки меншою, ніж у разі опромінення одиничними імпульсами наносекундного рубінового лазера, та через це на

утворення незворотних змін в опромінену матеріалі для мілісекундного режиму опромінення потрібна набагато більша густина енергії, ніж для наносекундного. За оцінкою, це становить 10^{-4} – 10^{-5} від максимального значення (див. рис. 1, криві 3, 4). Для кривої 3 рис. 2 оцінка густини енергії в імпульсі дорівнює добутку потужності на тривалість імпульсу, тобто $0,05 \text{ Дж/см}^2$, а з урахуванням поглинання – $0,025 \text{ Дж/см}^2$. Останнє значення густини енергії значно перевищує густину енергії насичення першого зв'язку та майже в два рази менше від густини енергії насичення збудження перших двох зв'язків. Тобто це значення є проміжним. Саме тому частина енергії імпульсу неодимового лазера йде на утворення дефектоутворення (генерацію донорних центрів), а частина – на переопромінення, яке значно інтенсивніше від імпульсу, ніж для рубінового лазера.

Окрім того, у разі проміжних режимів опромінення зростає час релаксації, та звані екситонні краплі живуть до 10^{-2} с. Звідси можна зробити висновок, що утворення донорних центрів у приповерхневій області в разі опромінення як мілісекундними, так і наносекундними імпульсами однаково. Тільки в разі опромінення мілісекундними імпульсами більша частина енергії витрачається на перевипромінення та зростає роль багатофотонних процесів поглинання, які призводять до структурних змін в об'ємі опроміненого матеріалу. Для кривої 2 рис. 2 інтенсивність утворення вторинного випромінювання принаймні у вісім разів більша, ніж для кривої 1 рис. 2. Донорні центри в разі опромінення з густинами енергії $0,002 \text{ Дж/см}^2$ за великої кількості імпульсів та переопроміненнь значно збільшують свій час життя, що з урахуванням багатофотонного поглинання призводить до спостережуваних результатів.

Такі ж оцінки можна навести для “сферичного” та “циліндричного” наближень [1, 2]. Наприклад, енергія насичення збудження першого зв'язку для “сферичного” наближення дорівнює $8,6 \cdot 10^{-5} \text{ Дж/см}^2$, а двох зв'язків – $0,03 \text{ Дж/см}^2$. З урахуванням того, що радіус сфери впливу поглинутого кванта рубінового лазера становить 25 \AA , можна обчислити густину кубів стороною 50 \AA . В 1 см^3 поміщається $8 \cdot 10^{18}$ “кубів” впливу кванта рубінового лазера, що відповідає густині енергії $1,28 \text{ Дж/см}^3$, або ж $6,4 \cdot 10^{-6} \text{ Дж/см}^2$, а з урахуванням коефіцієнта відбивання ці значення є в два рази більшими, тобто $2,56 \text{ Дж/см}^3$, або ж $1,28 \cdot 10^{-5} \text{ Дж/см}^2$. Зазначимо, що те саме потрібно робити з даними “сферичного” наближення.

Аналогічні розрахунки можна зробити, використовуючи “циліндричне” наближення [1, 2], параметри циліндра для кванта рубінового лазера беремо такі: радіус – 8 \AA , висота – 40 \AA . Об'єм одного циліндра – $8,04 \cdot 10^{-21} \text{ см}^3$, в 1 см^3 маємо $1,24 \cdot 10^{20}$ циліндрів, що відповідає густині енергії $25,2 \text{ Дж/см}^3$ та $1,26 \cdot 10^{-4} \text{ Дж/см}^2$, для відповідних паралелепіпедів об'ємом $9,8 \cdot 10^{-21} \text{ см}^3$ відповідні густини енергії – $20,4 \text{ Дж/см}^3$ та 10^{-4} Дж/см^2 . Для порівняння з експериментом ці дані також потрібно помножити на 2.

Зазначимо, що саме з насичення збудження першого зв'язку, яке відповідає ширині забороненої зони антимоніду індію (чистий ковалентний зв'язок відповідає ширині забороненої зони кристалу, бо кристал прямо зонний), починаються як нелінійно, так і релаксаційнооптичні процеси, тобто інтерференційні та багатофотонні процеси поглинання, перевипромінювання тощо.

Наголосимо, що зі збільшенням інтенсивності опромінення збільшується і час релаксації відповідного збудження. Саме цим можна пояснити відмінність профілів кривих 1 та 2 рис. 2.

Для поглинання світла метастабільними або ж нестабільними центрами ми маємо головно фотохімічні процеси в лінійному режимі за насичення збудження [1–3]. Фотохі-

мічні (фотокристалохімічні) процеси можна ініціювати, використовуючи режим каскадного насичення збудження відповідних хімічних зв'язків за часів, менших від часів релаксації цих збуджень. Теплові процеси в цьому разі відіграють роль відновлювальних релаксаційних процесів. Саме утворення незворотних змін зумовлене електродинамічним (фотокристалохімічним) характером взаємодії. Колективні електромагнітні процеси для антимоніду індію відбуваються в 1 000 разів швидше, ніж теплові. За режиму насичення збудження саме електродинамічні процеси є основними для формування як незворотних змін, так і перевипромінювання. Як бачимо з наведених оцінок, ці умови задовольняють криві 2 та 3 рис. 2. Оцінки для поглинання неодимового лазера можна виконати також за цією схемою, там значення поверхневих густин енергій будуть дещо більшими для прямого методу з огляду на менший коефіцієнт поглинання, для “сферичного” та “циліндричного” наближення параметри сфери та циліндра будуть дещо меншими, оскільки один квант неодимового лазера розриває лише 3, 7 зв'язків.

Зазначимо, що ми не розглядали процеси двофотонного поглинання основного випромінювання, хоча за цих інтенсивностей опромінення просвітлення є доволі незначним. Загалом же наведені оцінки якісно дають змогу пояснити експериментальні результати. Для більш кількісного моделювання не вистачає даних з вивчення власного та багатофотонного поглинання в антимоніді індію. Ці вимірювання потрібно проводити від видимого до середнього інфрачервоного діапазону спектра, тому сьогодні це доволі складна та дорога експериментальна проблема.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. *Trokhimchuck P. P.* Foundations of Relaxed Optics / P. P. Trokhimchuck. – Lutsk : Vezha, 2011. – 627 p.
2. *Trokhimchuck P. P.* Nonlinear and Relaxed Optical Processes / P. P. Trokhimchuck. – Lutsk : Vezha-Print, 2013. – 280 p.
3. *Трохимчук П.П.* Проблема моделювання дифузійних процесів та процесів переносу випромінювання в релаксаційній оптиці / П. П. Трохимчук, І. П. Дмитрук, М. С. Пеньковський // Наук. вісник Волин. ун-ту ім. Лесі Українки. – 2012. – Вип. 16 (241). – С. 63–67.
4. *Чандрасекар С.* Перенос лучистой энергии / С. Чандрасекар. – М.: Иностран. л-ра, 1953. – 432 с.
5. *Трохимчук П. П.* Проблема моделювання фотостимульованої дифузії в бінарних напівпровідниках / П. П. Трохимчук // Наук. вісник Волин. ун-ту ім. Лесі Українки. – 2010. – Вип. 29. – С. 52–55.
6. *Богатырев В.А.* / В. А. Богатырев, Г. А. Качурин // Физика и техника полупроводников. – 1977. – Т. 11. – С. 100.
7. *Trokhimchuck P. P.* Problem of saturation of excitation in relaxed optics / P. P. Trokhimchuck // J. of Optoelectronics and Advanced Materials. – 2012. – Vol. 14. – P. 363–370.

Стаття: надійшла до редакції 13.09.2013,
доопрацьована 20.10.2013,
прийнята до друку 30.10.2013.

**RELAXED OPTICS: PROBLEMS OF MODELING
OF PROCESSES OF REIRRADIATION**

P. Trokhimchuck, I. Dmytruk

*Lesya Ukrainka Eastern European National University,
Voly av., 13, 43025, Lutsk, Ukraine
trope@univer.lutsk.ua; trope53@yahoo.com; trope@yandex.ru*

The problem of influence of reirradiation on generation of irreversible changes in laser-irradiated materials is analysed. Difference between processes of reirradiation and radiative-stimulated diffusion is shown. These phenomena are analysed for indium antimonide. Models, which are necessary for explanation of proper experimental data are represented and discussed.

Key words: reirradiation processes, diffusive processes, relaxed optics, saturation of excitation, laser implantation, cascade processes.

**РЕЛАКСАЦИОННАЯ ОПТИКА: ПРОБЛЕМЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ
ПРОЦЕССОВ ПЕРЕИЗЛУЧЕНИЯ**

П. Трохимчук, И. Дмитрук

*Восточноевропейский национальный университет им. Леси Украинки,
пр. Воли, 13, 43025, Луцк, Украина
trope@univer.lutsk.ua; trope53@yahoo.com; trope@yandex.ru*

Проанализировано проблему влияния переизлучения на формирование необратимых изменений в лазерно-облученных материалах. Это одна из самых важных проблем релаксационной оптики. Показано отличие эффектов переизлучения от эффектов радиационно-стимулированной диффузии. Эти эффекты рассмотрено на примере антимионида индия. Приведено и обсуждено соответствующие модели, которые позволяют описать наблюдаемые явления.

Ключевые слова: процессы переизлучения, процессы диффузии, релаксационная оптика, насыщение возбуждения, лазерное легирование, каскадные процессы.