

文章编号: 1002-2082(2009)02-0325-05

飞秒激光辐照下单晶硅薄膜中超快 能量运输的数值模拟

刘国栋, 罗福, 王贵兵, 李剑峰, 付博

(中国工程物理研究院 流体物理研究所, 四川 绵阳 621900)

摘要: 利用载流子运输模型对飞秒激光辐照下单晶硅亚微米薄膜中的能量运输过程进行数值模拟。研究了不同辐照能量密度和不同激光波长对载流子密度和温度超快变化过程的影响规律。结果表明, 在 800 nm 激光辐照下, 不同入射能量密度仅影响载流子密度和温度响应的峰值, 但达到峰值的时刻不变。平衡态的恢复过程受入射能量密度影响很小。在不同波长激光辐照下, 光子能量越大, 载流子密度和温度达到峰值所用时间越短, 对应峰值越大, 但衰减速度也越快。当入射光子能量大于单晶硅的直接带隙时, 快速衰减时间常数可以与载流子能量弛豫时间相当。

关键词: 飞秒激光; 能量运输; 数值模拟; 单晶硅薄膜

中图分类号: TN249

文献标志码: A

Numerical simulation of ultrafast energy transport in monocrystalline silicon films under femtosecond laser irradiation

LIU Guo-dong, LUO Fu, WANG Gui-bing, LI Jian-feng, FU Bo

(Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang 621900, China)

Abstract: The process of the ultrafast energy transport in monocrystalline silicon sub-micron films irradiated with femtosecond laser was simulated using the carrier transport model based on the Boltzmann transport equation. The effects of different irradiation energy density and laser wavelength on the carrier density and the process of temperature ultrafast variation were investigated. The numerical calculation results show that, irradiated at 800 nm, the incident energy density influences the peaks of the carrier density and temperature only, but the occurrence time of their peaks does not change. The recovery process toward the equilibrium state is hardly influenced by the incident energy density. Under the irradiation of different wavelengths, the higher the photon energy is, the less time the carrier density and temperature take to reach the peak values, the bigger the corresponding peak appears and the faster the attenuation velocity becomes. The time constant of the fast attenuation is equal to the carrier energy relaxation time when the incident photon energy is larger than the band-gap of the monocrystalline silicon.

Key words: femtosecond laser; energy transport; numerical simulation; monocrystalline silicon film

收稿日期: 2008-07-30; 修回日期: 2008-09-20

基金项目: 中国工程物理研究院科学技术基金(2006042)

作者简介: 刘国栋(1980—), 男, 山西人, 博士研究生, 主要从事强激光效应的研究工作。E-mail: gd.liu@yahoo.com.cn

引言

现代信息技术的发展主要是建立在快速响应和高速微电子器件基础上,而在半导体微电子器件中,高响应速度和微尺度紧密相连^[1]。当器件结构的长度和材料中的能量载流子平均自由程相当,或当能量激励时间与载流子弛豫时间相当时,能量转化和输运特性与宏观尺度显著不同,此时宏观定律失去了成立的物理基础^[2-3]。

平衡状态时的载流子系统可以用载流子的平衡分布函数来表征,然而只有当系统处于非平衡状态时输运才会发生,此时这些分布函数不再适用于描述系统的状态。对于数量非常庞大的载流子系统,跟踪系统中所有粒子运动轨迹的方法显然是不现实的,因而需要在统计描述方法中引入非平衡分布函数,Boltzmann 输运方程(BTE)是控制非平衡分布函数的最有效工具^[4]。Qiu 和 Tien^[5]从电子 BTE 出发得到双曲双步输运模型(HTS),预测了超短脉冲激光辐照下金属中自由电子的温度变化;Jun Xu^[6]在能量分布函数形式的 BTE 基础上发展了晶格 Boltzmann 模型(LBM),数值模拟了不同脉宽激光辐照下半导体硅中的晶格温升。然而由于上述模型将激光直接作为外热源加载,HTS 仅适用于自由电子的热输运,LBM 则仅针对声子热输运,没有考虑电声子间的弛豫和能量转化。

本文在 BTE 基础上,由一组耦合的速率方程推导出自洽输运模型,并在飞秒激光辐照下单晶硅亚微米薄膜中的能量输运过程进行了数值模拟,通过模型预估与实验结果的比对确定重要物理参数的取值,讨论了不同能量密度、不同波长飞秒激光辐照下载流子的超快响应规律。

1 载流子输运动力学模型

在飞秒激光激励下,半导体材料中的电子通过单光子或多光子吸收获得能量而由价带跃迁至导带,同时在价带中产生了空穴。电子和空穴经历了一段时间和空间演化后,其中的一部分通过 Auger 过程或 Shockley-Reed-Hall (SRH) 过程复合,而新的电子-空穴对则通过碰撞电离产生。过剩能量 $h\nu - E_g$ 或 $2h\nu - E_g$ 成为动能而提高了载流子温度。通过散射、碰撞过程,载流子在几百飞秒内成为热载流子而可以用 Fermi-Dirac 分布函数来描述,电子和空穴的分布函数可以具有不同的 Fermi 能级但

具有相同的温度($T_e = T_h$)^[7]。载流子和声子之间的能量弛豫过程也在同时进行,并最终建立起热平衡态。

在 BTE 弛豫时间近似下,可得到载流子电流(j_c)和能流(w_c)表达式^[8](下标 c 代表载流子):

$$\begin{aligned} j_c &= \frac{\sigma_c}{q} \nabla \varphi_c - \sigma_c S_c \nabla T_c \\ w_c &= \left(\pi_c - \frac{\varphi_c}{q} \right) j_c - \kappa_c \nabla T_c \end{aligned} \quad (1)$$

式中: q 是单位电荷电量; φ_c 是载流子化学势; σ_c 是电导率; S_c 是 Seebeck 系数; π_c 是 Peltier 系数; κ_c 是热导率;分别表示为

$$\begin{cases} \sigma_c = qn_c \mu_c^0 H_{1/2}^0(\eta_c) \\ S_c = -\frac{k_B}{q} [\eta_c - 2H_0^1(\eta_c)] \\ \pi_c = T_c S_c \\ \kappa_c = \frac{k_B^2 \sigma_c T_c}{q^2} [6H_0^2(\eta_c) - 4H_0^1(\eta_c)^2] \end{cases} \quad (2)$$

式中: $H_\xi^\zeta(\eta_c)$ 代表 ξ 阶与 ζ 阶 Fermi-Dirac 积分比; η_c 是约化的 Fermi 能级; n_c 是局域载流子密度。

对于激光辐照形成的等离子体,由于电荷分离而产生的 Dember 场将阻止载流子(电子、空穴)电流和数密度之间差别变大,因此有关系式:

$$j_c = -j_h, \quad N = N_e = N_h \quad (3)$$

假设准费米能级保持在带隙中间,则所有 Fermi-Dirac 积分都近似具有 Maxwell-Boltzmann 分布函数的形式, $H_j^i(\eta_c) \sim 1$ 。因此,由以上各式可以得到载流子密度流 $J (= -j_c/q)$ 和载流子双极能流 W ^[8-9]:

$$J = -D_N \left[\nabla N + \frac{2N}{kT_e} \nabla E_g + \frac{N}{2T_e} \nabla T_e \right] \quad (4)$$

$$W = w_c + w_h = (E_g + 4k_B T_e) J - (\kappa_e + \kappa_h) \nabla T_e \quad (5)$$

在局域热动力学平衡的前提条件下,载流子可以用随时间和空间变化的宏观参量描述,因此模型包括控制载流子数密度、能量密度和晶格能量的速率方程:

$$\frac{\partial N}{\partial t} + \nabla \cdot J = G + R \quad (6)$$

$$\frac{\partial U_c}{\partial t} + \nabla \cdot W = S_u - L_u \quad (7)$$

$$C_L \frac{\partial T_L}{\partial t} = \nabla \cdot \kappa_L (\nabla T) + L_u \quad (8)$$

式中:载流子系统的总能量密度 U_c 为载流子数密度与单位体积带隙能量和动能之和的乘积; G 是

载流子产生率; R 是复合率; S_u 是载流子总能量源; L_u 是载流子系统向晶格的能量转移率。载流子产生率和净复合率分别表示为

$$G = (\alpha I(r, t) + 0.5\beta I^2(r, t)) / h\nu \quad (9)$$

$$R = -\gamma N^3 + \delta(T_e)N \quad (10)$$

式中: α 和 β 分别为线性吸收系数和双光子吸收系数; γ 和 δ 分别是 Auger 复合系数和碰撞电离系数。载流子系统能量的惟一来源是激光脉冲, 因而有:

$$S_u = (\alpha + \theta N)I(r, t) + \beta I^2(r, t) \quad (11)$$

载流子系统向晶格的能量转移项为

$$L_u = C_{eh}(T_e - T_L) / \tau_E \quad (12)$$

式中: $C_{eh} = \partial U_C / \partial T_e |_N$ 是电子空穴对的比热容; τ_E 是载流子能量弛豫时间。对于体吸收材料, 激光在传播方向上的衰减主要来自于单光子、双光子和自由电子吸收, 因此有:

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2 - \theta NI \quad (13)$$

由于激光辐照区域尺度远大于吸收深度, 因而在沿材料厚度的一维方向上, 可以得到控制 N, T_e, T_L 变化的连续性方程:

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \frac{\alpha I(z, t) + 0.5\beta I^2(z, t)}{h\nu} - \gamma N^3 + \delta N - \frac{\partial J}{\partial z} \quad (14)$$

$$C_{eh} \frac{\partial T_e}{\partial t} = (\alpha + \theta N)I(z, t) + \beta I^2(z, t) - \frac{\partial W}{\partial z} - \frac{C_{eh}(T_e - T_L)}{\tau_E} - \frac{\partial N}{\partial t}(E_g + 3k_B T_e) \quad (15)$$

$$C_L \frac{\partial T_L}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left[\kappa_L \left(\frac{\partial T_L}{\partial z} \right) \right] + \frac{C_{eh}(T_e - T_L)}{\tau_E} \quad (16)$$

2 数值模拟与讨论

对耦合运输方程进行数值计算, 其中激光脉冲的时域分布为高斯型, 半高宽(FWHM)80 fs, 单晶硅样品所用到的光学吸收率、热导率等材料参数主要来自于文献[8, 10]。表面复合速度(SRV)是表征半导体材料表面特性的重要参数, 它直接描述了过剩载流子主要通过表面缺陷和杂质决定的表面电子态的复合率, 通过边界条件耦合进入模型。初始条件: $N(0, z) = N_{eq} \approx 10^{12} \text{ cm}^{-3}$, $T_e(0, z) = T_L(0, z) = 300 \text{ K}$, 激光脉冲辐照起始时间 $t=0$, 在 $t_m = 3t_p$ 时达到高斯分布的峰值。

为验证模型, 优化双极扩散系数和表面复合速度等参数, 首先数值计算了波长 800 nm, 能量密度 16.6 mJ/cm² 激光辐照下, 单晶硅薄膜内的载流子密度和温度的超快变化过程, 如图 1 所示。受激载流子温度相对载流子密度更早达到峰值, 这是由于在激光脉冲开始的初始时刻, 只有很少的电子-空穴对产生, 导致载流子比热容 C_{eh} 很小, 根据(15)式, 此时具有正的净能量转化, 尽管吸收能量不多但足以造成载流子温度的显著快速升高。随着时间进一步加长及激光能量的沉积, 载流子密度急剧增大, (15)式中由于载流子密度变化造成能量向晶格的转移成为主导, 在某一时刻净能量转化由正变负, 从而在载流子温度达到峰值之后随着能量向晶格的转移而快速下降。由数值模拟结果得到的超快反射率变化与瞬态反射率实验结果吻合(图 1 中插

图所示), 并得到优化的表面复合速度为 $7.3 \times 10^6 \text{ cm/s}$ 。

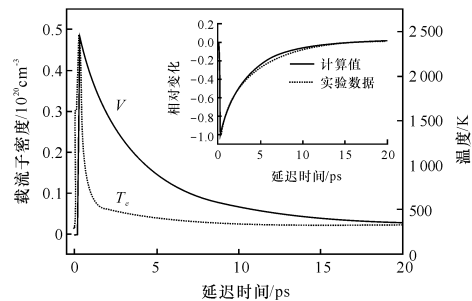


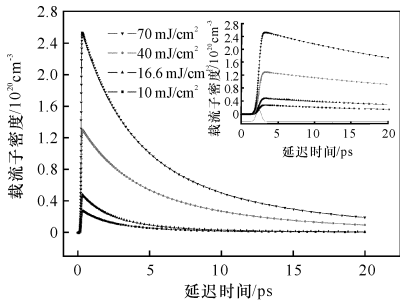
图 1 单晶硅表面载流子密度 N 和温度 T_e 的超快变化过程 ($f_p = 16.6 \text{ mJ/cm}^2$, 插图为数值模拟的超快反射率变化与瞬态反射率实验结果的比对)

Fig. 1 Ultrafast variation process of carrier density N and electron temperature T_e at the surface of monocrystalline silicon ($f_p = 16.6 \text{ mJ/cm}^2$, in the inset, the calculated response of reflectivity change (solid line) is compared with experimental results (dotted line))

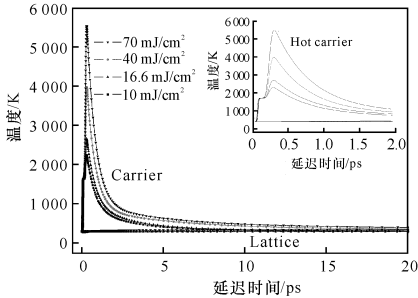
2.1 不同辐照能量密度对载流子运输的影响

对于不同的辐照能量密度, 单晶硅表面载流子密度和等效温度在 20 ps 内的瞬态响应过程如图 2 所示, 其中插图为 2 ps 内的变化曲线。随辐照能量密度的增大, 受激载流子密度和载流子温度响应的峰值也在增大。等效电子温度的峰值分别约为 2 200 K, 2 600 K, 4 000 K 和 5 500 K, 而在计算时间内晶格温升为 4 K~50 K。但载流子密度和温

度达到峰值的时刻并不随入射能量密度变化,对应时刻分别在 0.33 ps 和 0.29 ps。达到峰值之后,载流子密度经历了 1 ps 左右的快速衰减和相对缓慢的长时间衰减过程。经拟合得到快速衰减时间常数为 $\tau_0 = 5$ ps,它受入射能量密度的影响很小。 τ_0 远远小于百皮秒量级的 Auger 复合时间常数 τ_r 和载流子扩散时间常数 τ_d ($\tau_d = l^2/D_N$, l 为载流子扩散特征长度),可见表面复合过程主导了载流子密度的变化。1 ps 之后衰减时间常数增大了一个量级,说明表面过剩载流子向体内的扩散和 Auger 复合逐渐变得重要。入射能量密度越高,载流子与晶格建立热平衡的时间就越长,但和平衡态相比仍有一些过剩自由载流子。



(a) 单晶硅表面载流子密度



(b) 电子温度和晶格温度

图 2 不同强度激光辐照下单晶硅表面载流子密度、电子温度和晶格温度在 20 ps 内的瞬态响应过程

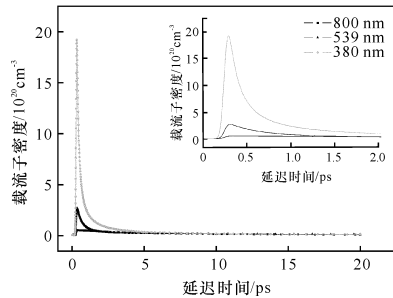
Fig. 2 Transient response process of carrier density, electron and lattice temperature within 20 ps at surface of monocrystalline silicon under different laser irradiation

2.2 不同激光波长对载流子运输的影响

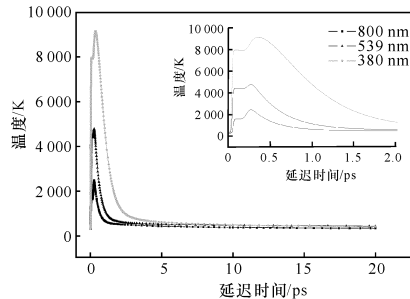
在相同入射能量密度 ($f_p = 16.6$ mJ/cm²) 不同波长的激光辐照下,入射光子能量不同,材料的吸收机制和相应的物理参数(反射率、光学吸收深度等)也有很大区别。由于单晶硅具有近红外的间接带隙 $E_g = 1.12$ eV 和紫外直接带隙 $E_g = 3.1$ eV,

因此当入射光子能量小于直接带隙时,主要的吸收机制为单光子、双光子和自由电子吸收,光学吸收深度较大;而当入射光子能量大于直接带隙时,主要的吸收机制为单光子吸收,吸收系数增大 1~2 个量级,光学吸收深度显著减小至 100 nm 以内。

入射波长分别为 800 nm、539 nm 和 380 nm 激光辐照下的单晶硅表面载流子密度和等效温度在 20 ps 内的瞬态响应过程如图 3 所示。随着入射光子能量的增大,载流子密度和等效电子温度响应的峰值都在增大,其中 380 nm ($h\nu \sim 3.2$ eV) 入射光激励产生的最大载流子密度与 800 nm ($h\nu \sim 1.55$ eV) 入射光相比增大了 2 个量级。光子能量越大,达到峰值所用时间越短,对应峰值的时刻分别为 0.33 ps、0.30 ps 和 0.28 ps,但之后在 1 ps 内快速衰减的时间常数 τ_0 也越小,即衰减速度越快,分别为 5 ps、0.5 ps 和 0.27 ps。后者已与载流子能量弛豫时间相当,这是由于对于 380 nm 波长的入射光,载流子产生率很高,大量的光生载流子都集中在单晶硅表面 60 nm 以内,在表面形成很大的密度



(a) 单晶硅表面载流子密度



(b) 等效电子温度

图 3 不同波长激光辐照下单晶硅表面载流子密度、等效电子温度在 20 ps 内的瞬态响应过程

Fig. 3 Transient response process of carrier density and equivalent electron temperature within 20 ps at surface of monocrystalline silicon under irradiation of different laser wavelength

梯度,使得由于表面复合和载流子扩散造成表面数密度减小的速度显著增大。也正是由于很高的载流子产生率,在激光脉冲开始的很短时间内,即使注入能量很少也产生了大量的光生载流子,使得载流子比热容 C_{eh} 相对增大,在能量转化的竞争中由于载流子密度变化造成的能量转移作用变得显著,因而对入射波长为 380 nm 的飞秒激光,载流子温度在其密度达到峰值之后的 0.072 ps 达到峰值。

3 结论

本文采用载流子运输模型对单晶硅亚微米薄膜中的能量运输过程进行了数值模拟。通过与瞬态反射率实验结果的比对得到了优化的扩散系数和表面复合速度等参量。研究结果表明,在同一波长(800 nm)激光辐照下,受激载流子温度相对载流子密度更早达到峰值,且峰值随辐照能量密度的增大而增大,但达到峰值的时刻并不随之改变。载流子温度下降并与晶格建立热平衡的时间随入射能量密度增大而延长。在不同波长激光辐照下,光子能量越大,载流子密度和温度达到峰值所用时间越短,对应峰值越大,但衰减速度越快。当入射光子能量大于单晶硅的直接带隙时,受激载流子温度在其密度值之后达到峰值,并且快速衰减时间常数与载流子能量弛豫时间相当。

参考文献:

[1] OTHONOS A. Probing ultrafast carrier and phonon dynamics in semiconductors [J]. J. Appl. Phys.,

1998,83(4):1789-1830.

- [2] TIEN C L, CHEN G. Challenges in microscale conductive and radiative heat transfer [J]. J. Heat Transfer, 1994, 116: 799-807.
- [3] FLIK M I, CHOI B I, GOODSON K E. Heat transfer regimes in microstructures [J]. J. Heat Transfer, 1992, 114: 666-674.
- [4] 刘静. 微米/纳米尺度传热学[M]. 北京: 科学出版社, 2002.
- LIU Jing. Micron/nanoscale heat transfer [M]. Beijing: Science Press, 2002. (in Chinese)
- [5] QIU T Q, TIEN C L. Heat transfer mechanisms during short-pulse laser heating of metals [J]. Journal of Heat Transfer, 1993, 115: 835-841.
- [6] XU Jun, WANG Xin-wei. Simulation of ballistic and non-Fourier thermal transport in ultra-fast laser heating [J]. Physica B, 2004, 351: 213-226.
- [7] JAGDEEP S. Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures [M]. Berlin: Springer, 1998.
- [8] HENRY M. van Driel. Kinetics of high-density plasmas generated in Si by 1.06- and 0.53 μm picosecond laser pulses [J]. Phys. Rev. B, 1987, 35(15): 8166-8176.
- [9] Andreas Othonos and Constantinos Christofides. Ultrafast dynamics in phosphorus-implanted silicon wafers: the effects of annealing [J]. Phys. Rev. B, 2002, 66: 085206(1-10).
- [10] PALIK E D. Handbook of optical constants of solids [M]. London: Academic Press Inc., 1985.