

Генерация третьей гармоники от поверхности кремния, структурированной фемтосекундными лазерными импульсами

С.В.Заботнов, И.А.Остапенко, Л.А.Головань, В.Ю.Тимошенко,
П.К.Кашкаров, Г.Д.Шандыбина

При облучении кристаллического кремния с ориентацией поверхности (100) фемтосекундными лазерными импульсами были сформированы периодические микроструктуры – решетки, ориентированные перпендикулярно направлению поляризации излучения. Исследовано поведение сигнала третьей оптической гармоники в таких микроструктурах. Показано, что ориентационные зависимости сигнала третьей гармоники для оптически наведенных решеток определяются морфологией последних на облученной поверхности кремния, что позволяет проводить диагностику данных микроструктур in situ.

Ключевые слова: фемтосекундные импульсы, микроструктурирование, генерация третьей гармоники, взаимодействие излучения с веществом.

Фемтосекундное лазерное облучение является многообещающим способом обработки поверхности твердого тела, поскольку при абляции минимальны как термическое повреждение поверхности, так и количество брызг и осколков из расплава [1]. Прецизионное лазерное сверление [2] и формирование двух- и трехмерных субмикроструктур [3] представляют собой яркие примеры применения данной технологии в микрообработке материалов. Также хорошо известна возможность формирования на поверхности твердого тела в результате ее облучения фемтосекундными лазерными импульсами высококачественных периодических микроструктур [4–8] при интерференции падающей и поверхностной волн. С точки зрения фундаментальных исследований разделение во времени взаимодействия лазерного излучения с веществом и появления фазовых переходов в облучаемом материале делает фемтосекундное лазерное облучение твердых тел важным для понимания электрон-фононного взаимодействия и изучения неравновесных гидродинамических процессов в твердом состоянии.

Особый интерес представляет образование в результате фемтосекундного лазерного облучения упорядоченных микроструктур на поверхности кремния [6–8]. Для создания новых оптических и электронных устройств перспективным является использование кремниевых микроструктур, формируемых различными методами. Большая величина двулучепреломления щелевых кремниевых структур [9] позволяет, например, управлять жидкостью на поверхности микроструктурированного кремния [10]. Неравновесные процессы при фазовых переходах в приповерхностной области кремния в случае фемтосекунд-

ного лазерного облучения могут приводить к возникновению наноструктур, что открывает новые возможности для кремниевой оптоэлектроники и создания кремниевых лазеров [11]. В связи с этим становятся актуальными задачи контроля формируемых структур in situ и определения распределения локального электромагнитного поля на микроструктурированной поверхности кремния.

Эффективным инструментом детектирования микроструктур на поверхности кристаллического кремния является метод генерации третьей гармоники (ТГ). Поскольку интенсивность ТГ пропорциональна шестой степени напряженности локального поля в области вблизи поверхности, этот метод очень чувствителен к вариациям локального поля на анизотропно микроструктурированной поверхности. Данный метод хорошо зарекомендовал себя при определении разупорядочения и аморфизации приповерхностных слоев кремния [12–14]. Отметим также, что генерация ТГ является локальным методом. В настоящей работе мы провели поляризационно-чувствительные измерения нелинейно-оптического отклика в процессе генерации ТГ на поверхности анизотропно микроструктурированного кремния.

Микроструктурирование поверхности кремния и ее диагностика осуществлялись с помощью излучения ТГ при использовании лазерной системы, схема которой приведена на рис.1. Фемтосекундные лазерные импульсы после выхода из задающего генератора на кристалле форстерита, активизированного ионами Cr^{4+} ($\lambda = 1.25$ мкм), усиливались в системе стретчер – регенеративный усилитель – компрессор и на выходе имели линейную поляризацию, длительность $\tau = 80$ фс и энергию $W \sim 250$ мкДж при частоте повторения $f = 10$ Гц. Полуволновая пластинка и призма Глана использовались как оптический аттенуатор, позволявший регулировать энергию падающего на образец лазерного импульса и тем самым переходить от режима формирования микроструктур к режиму диагностики их нелинейно-оптических свойств методом генерации ТГ. В процессе микроструктурирования интенсивность пропускаемого через такой аттенуатор излучения была максимальной. Диагностика этим

С.В.Заботнов, И.А.Остапенко, Л.А.Головань, В.Ю.Тимошенко, П.К.Кашкаров. Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; e-mail: zabotnov@vega.phys.msu.ru

Г.Д.Шандыбина. Санкт-Петербургский государственный университет информационных технологий, механики и оптики, Россия, 197101 С.-Петербург, ул. Саблинская, 14; e-mail: shandyb@ltech.ifmo.ru

Поступила в редакцию 5 июля 2005 г.

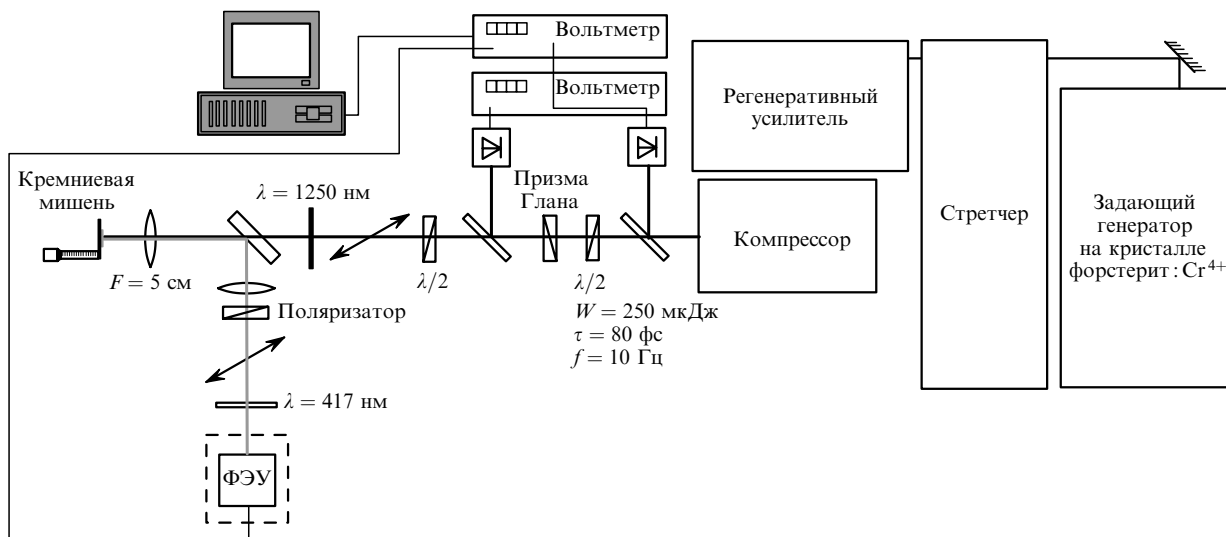


Рис.1. Экспериментальная установка для формирования микроструктур и их диагностики методом генерации ТГ.

методом осуществлялась при облучении образца импульсами с меньшей (на порядок) интенсивностью, при которой не происходила дальнейшая модификация поверхности.

Микроструктуры формировались при облучении фемтосекундными лазерными импульсами пластин кристаллического кремния с ориентацией поверхности (100). Лазерный пучок фокусировался при нормальном падении на образец с помощью линзы с фокусным расстоянием $F = 5$ см. Диаметр светового пятна на облучаемой поверхности составлял примерно 100 мкм, плотность энергии была равна 3 Дж/см². Длительность облучения варьировалась от нескольких секунд, когда явно начинала проявляться оптически наведенная решетка, до двух минут. Микроструктуры с максимальным контрастом неоднородностей формировались при облучении в течение ~2 мин (1200 импульсов). При более длительном экспонировании происходило разрушение и исчезновение микроструктур.

Процесс сбора данных в режиме генерации ТГ осуществлялся с помощью автоматизированной системы регистрации, состоящей из фотоэлектронного умножителя (ФЭУ), фотодиода, контролирующего накачку, синхронизирующего лавинного фотодиода, компьютера и двух стробоскопических вольтметров (Вохсар) для записи сигналов ТГ и накачки. Для уменьшения влияния флуктуаций интенсивности накачки на регистрируемый сигнал ТГ последний нормировался на множитель, пропорциональный третьей степени мощности накачки. Измерение ориентационных зависимостей сигнала ТГ заключалось в одновременном повороте плоскости поляризации накачки (полуволновой пластинкой) и поляризатора для ТГ, расположенного перед ФЭУ, таким образом, что плоскость поляризации регистрируемого сигнала ТГ оставалась параллельной плоскости поляризации излучения накачки.

На рис.2 представлено полученное в сканирующем электронном микроскопе типичное изображение микроструктурированной поверхности кремния после ее облучения 1200 импульсами. Оптически наведенная решетка с периодом 1 мкм ориентирована в направлении, перпендикулярном плоскости поляризации лазерного излучения. Глубина модуляции решетки также составляет около

1 мкм. Проведенные эксперименты показали, что поворот плоскости поляризации структурирующего лазерного излучения вызывает поворот поверхностной решетки на такой же угол независимо от исходной кристаллографической ориентации образца. Дополнительно мы исследовали процесс микроструктурирования кремния с ориентацией поверхности (100) и получили аналогичные результаты. Таким образом, формирование поверхностных оптически наведенных решеток в проводившихся экспериментах обусловлено периодически модулированным интерференционным световым полем в пространстве вблизи поверхности образца [15].

Для исследования динамики образования микроструктур in situ были измерены ориентационные зависимости интенсивности сигнала ТГ от микроструктурированной поверхности кремния при различных временах экспозиции. Типичные ориентационные зависимости для кристаллического и микроструктурированного кремния приведены на рис.3. Взаимное расположение поверхностных решеток и кристаллографических осей для этих зависимостей показано на вставке к рис.3. Кристаллографические оси [010] и [001] ориентированы под углом $\pm 45^\circ$ к направлению поляризации структурирующего излуче-

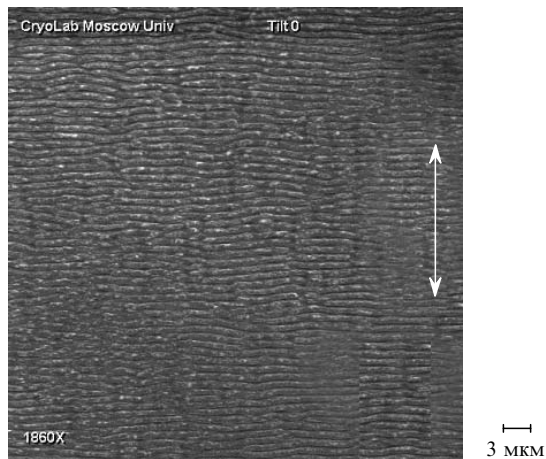


Рис.2. Изображение облученной 1200 импульсами поверхности кремния в сканирующем электронном микроскопе. Направление поляризации структурирующего лазерного излучения показано стрелкой.

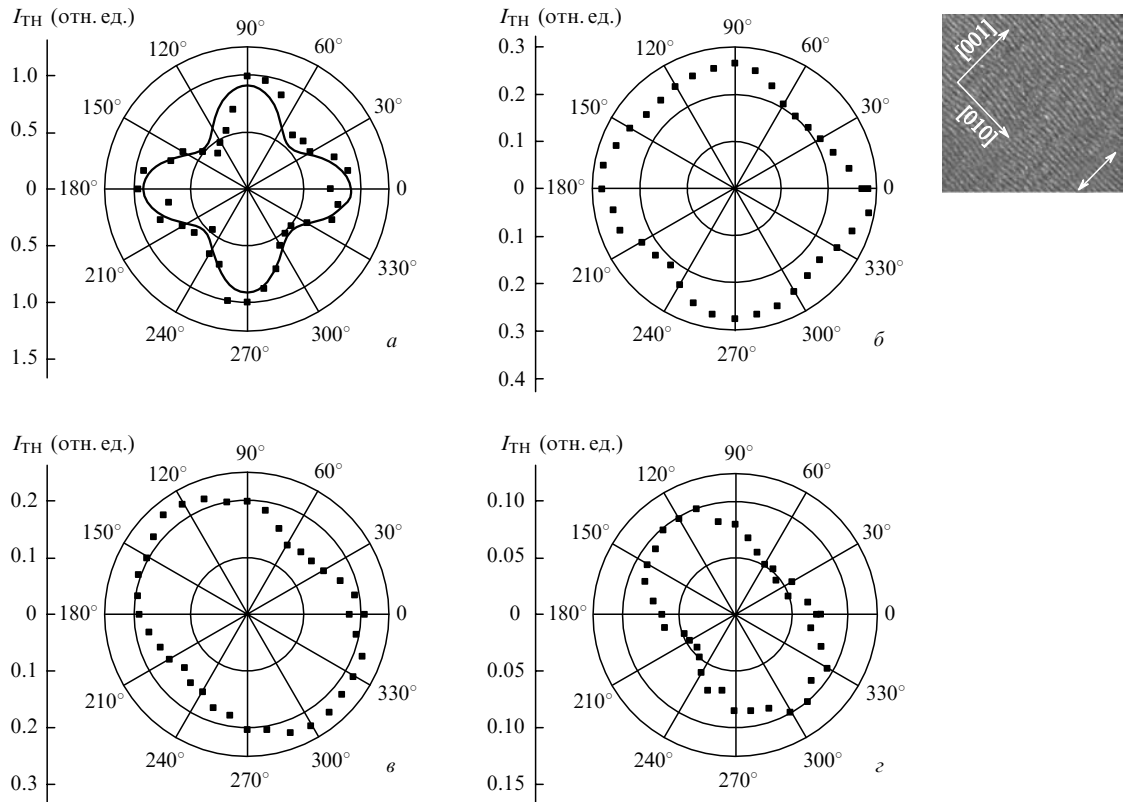


Рис.3. Ориентационные зависимости интенсивности ТГ для кристаллического кремния (а) и его микроструктурированной поверхности после облучения 100 (б), 300 (в) и 1200 (г) импульсами. Интенсивности нормированы на максимальное значение сигнала ТГ от кристаллического кремния. На вставке показаны направления кристаллографических осей и направление оптически наведенной решетки относительно направления, соответствующего нулевому углу.

ния, угол между направлением полос поверхностных решеток и направлением поляризации зондирующего излучения составляет 135° . Данная геометрия является наиболее удобной для дискриминации составляющих сигнала ТГ, генерируемого микроструктурой и собственно кристаллическим кремнием.

Ориентационная зависимость интенсивности ТГ для кристаллического кремния (рис.3,а) аппроксимировалась кривой, рассчитанной в соответствии с известной зависимостью [12, 13]

$$I_{\text{TH}}(\psi) \propto \left| (3 + \cos 4\psi)\chi_{1111}^{(3)} + 3(1 - \cos 4\psi)\chi_{1122}^{(3)} \right|^2. \quad (1)$$

Здесь $\chi_{1111}^{(3)}$ и $\chi_{1122}^{(3)}$ – компоненты тензора кубической восприимчивости; ψ – угол между направлением $\langle 100 \rangle$ и направлением поляризации зондирующего излучения. Отношение $\chi_{1122}^{(3)}/\chi_{1111}^{(3)}$, полученное из анализа ориентационных зависимостей интенсивности ТГ для кристаллического кремния, составляет 0.54 ± 0.05 , что близко к значениям, указанным в работе [12].

На рис.3,б–г представлены ориентационные зависимости для кремниевых периодических микроструктур, сформированных при облучении 100, 300 и 1200 импульсами соответственно. Видно, что форма этих зависимостей претерпевает существенные изменения с увеличением числа импульсов, а величина сигнала ТГ при этом монотонно уменьшается. Четырехлепестковая ориентационная зависимость интенсивности ТГ для кристаллического кремния (рис.3,а), определяемая кристаллографической ориентацией образца относительно направления поляризации структурирующего излучения, с ростом вре-

мени экспозиции равномерно преобразовывается в двухлепестковую (рис.3,в,г) с максимумами в направлении, перпендикулярном направлению поляризации структурирующего излучения. Таким образом, если кремний облучается в течение одной минуты (600 импульсов) или дольше, то форма ориентационных зависимостей определяется только расположением оптически наведенной решетки и не зависит от изначальной ориентации кристаллографических осей образца. Связь между ориентационными зависимостями интенсивности ТГ и морфологией поверхности микроструктурированного кремния становится понятной, если рассмотреть распределение локального поля на поверхностной решетке.

Простейшей моделью, позволяющей качественно проанализировать рассматриваемую ситуацию, является набор периодических воздушных и кремниевых полосок (рис.4). Поскольку генерацией ТГ в воздухе можно пренебречь, то только кремний дает вклад в результирующий сигнал ТГ. Следовательно, достаточно рассмотреть генерацию ТГ от кремниевых слоев. Если электромагнитное поле вне микроструктуры E_0 направлено вдоль полос, имитирующих оптически наведенную решетку, то оно остается неизменным внутри кремниевого слоя и $E_{\parallel} = E_0$ [16]. Дело обстоит иначе, если внешнее поле E_0 ориентировано перпендикулярно решетке и поле внутри кремниевого слоя $E_{\perp} = E_0 - 4\pi P$, где P – вектор поляризации. В данном случае локальное поле внутри кремниевых полос меньше внешнего поля. Мы также считаем, что нелинейно-оптический отклик от микроструктурированных полос кремния является изотропным вследствие формирования дефектов на поверхности и ее аморфиза-

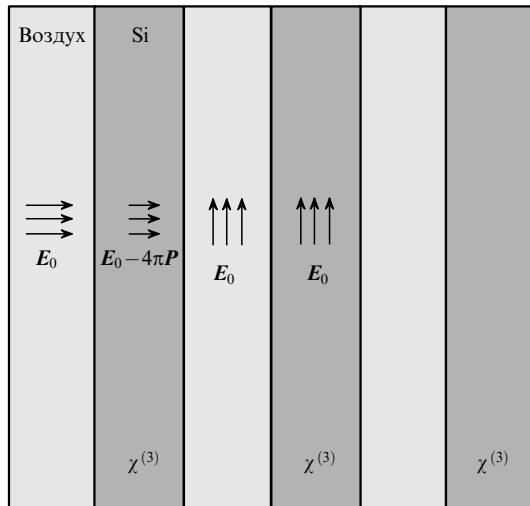


Рис.4. Модель распределения напряженности электромагнитного поля на поверхности микроструктурированного кремния.

ции [8, 13, 14]. Этим же эффектом, приводящим к уменьшению нелинейного отклика и увеличению рассеяния, можно объяснить и снижение примерно на порядок величины сигнала ТГ после двухминутного (1200 импульсов) облучения. Следовательно, ориентационная зависимость интенсивности ТГ определяется только распределением локального поля на поверхности. Поскольку $|E_{\parallel}| = |E_0|$ и $|E_{\perp}| = |E_0 - 4\pi P|$, а интенсивность $I_{\text{ТГ}} \propto |E|^6$ (где $E = E_{\parallel} + E_{\perp}$), то при направлении поляризации структурирующего излучения параллельно решетке интенсивность ТГ достигает максимального значения, а при направлении перпендикулярно решетке она минимальна.

Таким образом, показано, что морфология поверхностных решеток, полученных при фемтосекундном лазерном облучении кремния, определяется только поляризацией структурирующего излучения и не зависит от кристаллографической ориентации образца. Изображения, полученные с помощью электронного микроскопа, показывают, что направление кремниевых полос в оптически наведенных решетках перпендикулярно направлению поляризации структурирующего излучения. Диагностика кремниевых микроструктур, осуществлявшаяся методом генерации ТГ, показала, что сигнал ТГ от кремниевой поверхности, облучаемой более одной минуты (600 импульсов), также не зависит от взаимной ориентации кристаллографических осей образца и направления поляризации структурирующего излучения. Интенсивность ТГ

при этом определяется временем экспозиции, а направление максимумов в ориентационных зависимостях – направлением поляризации структурирующего излучения и перпендикулярно им, что напрямую связано с распределением локальных полей внутри оптически наведенной поверхностной решетки. Из сказанного следует, что фемтосекундное лазерное излучение является одновременно эффективным инструментом как для формирования оптически наведенных поверхностных микроструктур высокого качества, так и для их диагностики *in situ*, в частности для определения качества поверхностных решеток по нелинейно-оптическому отклику от них.

Авторы благодарны В.И.Емельянову за плодотворные обсуждения и В.С.Власенко за получение изображений в сканирующем электронном микроскопе. Работа была поддержана РФФИ (гранты № 03-02-16617, 04-02-08083, 05-02-17035) и программами Федерального агентства по науке и инновациям РФ.

1. Nolte S., Momma C., Jacobs H., Ostendorf A., Tunnermann A., Chichkov B.N., Welegehausen B., Welling H. *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**, 2716 (1997).
2. Nolte S., Momma C., Kamlage G., Ostendorf A., Fallinich C., von Alvensleben F., Welling H. *Appl. Phys. A*, **68**, 563 (1999).
3. Korte F., Serbin J., Koch J., Egbert A., Fallinich C., Ostendorf A., Chichkov B.N. *Appl. Phys. A*, **77**, 229 (2003).
4. Агранат М.Б., Ашитков С.И., Фортвов В.Е., Анисимов С.И., Дыхне А.М., Кондратенко П.С. *ЖЭТФ*, **115** (2), 675 (1999).
5. Reif J., Costache F., Henyk M., Pandelov S.V. *Appl. Surf. Sci.*, **197-198**, 891 (2002).
6. Bonse J., Baudach S., Krüger J., Kautek W., Lenzner M. *Appl. Phys. A*, **74**, 19 (2002).
7. Costache F., Kouteva-Arguirova S., Reif J. *Appl. Phys. A*, **79**, 1429 (2004).
8. Shen M.Y., Crouch C.H., Carey J.E., Mazur E. *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 5694 (2004).
9. Астрова Е.А., Перова Т.С., Толмачев В.А., Ременюк А.Д., Vij J., Moore A. *ФТП*, **37**, 417 (2003).
10. Krupenkin T.N., Taylor A.J., Schneider T.M., Yang S. *Langmuir*, **20**, 3824 (2004).
11. Степихова М.В., Жигунов Д.М., Шенгуров В.Г., Тимошенко В.Ю., Красильникова Л.В., Чалков В.Ю., Светлов С.П., Шалыгина О.А., Кашкаров П.К., Красильник З.Ф. *Письма в ЖЭТФ*, **81**, 614 (2005).
12. Moss D.J., van Driel H.M., Sipe J.E. *Appl. Phys. Lett.*, **48**, 1150 (1986).
13. Wang C.C., Bomback J., Donlon W.T., Huo C.R., James J.V. *Phys. Rev. Lett.*, **57**, 1647 (1986).
14. Yakovlev V.V., Govorkov S.V. *Appl. Phys. Lett.*, **79**, 4136 (2001).
15. Ахманов С.А., Емельянов В.И., Коротеев Н.И., Семиногов В.Н. *УФН*, **147**, 675 (1985).
16. Киттель Ч. *Введение в физику твердого тела* (М.: Наука, 1978).