

飞秒激光扫描不同温度下的硅片诱导形成微结构的差别

柳 崧 冯国英 邓国亮 李 玮

(四川大学电子信息学院, 四川 成都 610064)

摘要 不同温度下利用钛宝石激光器输出的飞秒激光脉冲(脉宽 42 fs, 中心波长 800 nm, 最大单脉冲能量 3.6 mJ), 通过扫描方式在硅表面诱导产生表面微结构。采用光学显微镜和扫描电镜观察飞秒激光诱导硅表面微结构的形貌, 发现不同温度下硅片表面形成的微结构区域和形貌出现明显的差异。根据观测结果, 分析比较了不同温度条件下硅材料微结构形成的能量阈值。随着温度升高, 形成的微结构区域减小, 飞秒激光诱导形成硅表面微结构的能量阈值升高。这对于研究飞秒激光与物质的相互作用有一定的参考价值, 也能对将来实现硅表面微结构的制作提供参考。

关键词 超快光学; 飞秒激光脉冲; 能量阈值; 硅; 微结构

中图分类号 TN249 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201239.0803003

Difference in Microstructures Induced by Femtosecond Laser Scanning on Silicon Surface at Different Temperatures

Liu Kui Feng Guoying Deng Guoliang Li Wei

(College of Electronics and Information Engineering, Sichuan University, Chengdu, Sichuan 610064, China)

Abstract The formation of laser-induced surface microstructure on silicon under irradiation with femtosecond laser pulses scanning (pulse width 42 fs, center wavelength $\lambda = 800$ nm, the maximum single pulse energy 3.6 mJ) at different temperatures is described. Scanning electron microscopy (SEM) and optical microscopy are used for observing the morphologies of the surface microstructure on silicon. It is found that the area and the morphologies of the microstructure on silicon both become different. According to the observations, the energy thresholds of producing microstructure on silicon at different temperatures are analyzed and compared. The damaged area of the silicon is reduced while the temperature rising. It is shown that the energy threshold of femtosecond laser ablation silicon surface to produce microstructure increases with the temperature rising. This is valuable for the study on femtosecond laser interaction with matter, and also for the formation of surface microstructure on silicon in the future.

Key words ultrafast optics; femtosecond laser pulse; energy threshold; silicon; microstructure

OCIS codes 160.6000; 320.7130; 350.1820

1 引 言

自激光发明以来, 人们就对光与物质的相互作用展开了深入的研究^[1~6]。20 世纪 80 年代飞秒激光技术的兴起为人类研究光与物质的相互作用提供

了新的技术手段。研究表明在材料表面诱导生成一定的微结构可以改变材料的物理化学性质^[7], 这在能源、通信等领域有着广泛的应用前景。硅在自然界储量丰富且广泛应用于微电子、光电子等产业。

收稿日期: 2012-03-21; **收到修改稿日期**: 2012-04-19

基金项目: 国家自然科学基金(60890200, 10976017)资助课题。

作者简介: 柳 崧(1986—), 男, 硕士研究生, 主要从事飞秒激光与物质相互作用方面的研究。

E-mail: liukui1008@163.com

导师简介: 冯国英(1969—), 女, 教授, 博士生导师, 主要从事新型激光技术方面的研究。

E-mail: guoying_feng@yahoo.com.cn(通信联系人)

飞秒激光诱导硅表面微结构也因此引起了人们广泛的关注,并进行了大量的研究。

哈佛大学的研究小组^[8~11]利用飞秒脉冲辐照半导体材料表面,诱导表面产生非常精细的纳米结构,该纳米结构通过量子效应能够有效地增加吸收面积和改变材料的能带结构,提高其发光效率和吸收效率。此外还将单晶硅片置于 SF₆, H₂S 等气体环境中,用飞秒激光辐射,在表面形成锥形的微结构,在 300~2500 nm 的光谱范围内吸收率几乎为 100%,用此方法处理过的 PIN 硅光电探测器在 1500 nm 处有很好的光电响应特性。Mahmood 等^[12]利用飞秒激光在硅表面形成纤维纳米结构,并发现这种结构对可见光的反射率降低,可以应用在硅光电池中。Bonse 等^[13~15]研究了利用飞秒激光脉冲在硅表面诱导产生周期性的微结构,并分析了微结构形成的机制。另外,Bonse 等^[16]还研究了飞秒激光作用下硅表面形成周期性微结构之后硅材料光学特性的变化。Huang 等^[17]研究了用飞秒激光在不同材料表面形成大面积的激光诱导周期性的表面结构后材料光学特性的变化。Shen 等^[18,19]研究了水中飞秒激光诱导硅表面形成的微结构及其形成机制。

研究人员还研究了硅材料在不同的环境下(如水、硫酸、真空等)飞秒激光诱导硅表面形成的微结构^[18,20,21]。但是关于不同温度下在硅表面用激光诱导形成微结构的研究还鲜有报道。本文研究了不同温度下在硅片表面用飞秒激光诱导形成的微结构以及硅材料的损伤阈值随硅片温度变化的规律。实验结果表明:温度升高,硅材料的损伤阈值增大。同时也发现在不同温度下飞秒激光诱导硅表面形成的微结构有明显的差异。这对于研究飞秒激光与物质的相互作用有一定的参考价值,也能为将来实现硅表面微结构的可控制作提供参考。

2 实 验

实验采用美国相干公司的钛宝石飞秒激光系统(Mantis+Legend Elite)。输出的飞秒激光中心波长为 800 nm,脉宽 42 fs,单脉冲能量可达 3.6 mJ,重复频率为 1 kHz。实验光路图如图 1 所示。飞秒激光系统输出的飞秒激光脉冲经过分光片(BS)反射后依次经过半波片、偏振片和聚焦透镜辐照到样品表面。激光光斑大小及光束特性的分析由光束质量分析仪完成。样品置于加热板上并和加热板一起固定在三维平移台上。通过转动半波片和偏振片、

调整聚焦透镜和样品之间的距离来控制飞秒激光辐照到样品表面的能量密度。

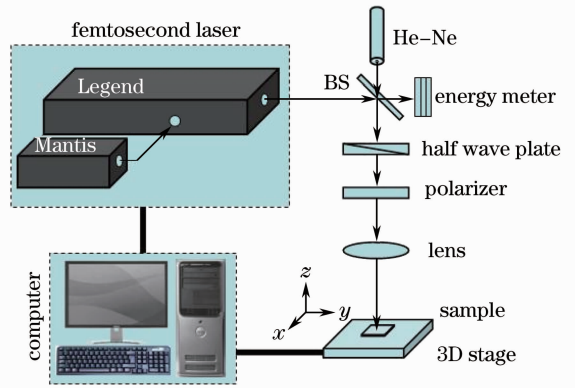


图 1 实验装置示意图
Fig.1 Experimental setup

实验过程中,通过计算机控制平移台的移动实现激光光束对样品的扫描。电控平移台移动速度约为 3 mm/s。辐照到样品表面的飞秒激光重复频率为 1 kHz,单脉冲能量为 21 μJ,脉宽为 42 fs。用电荷耦合器件(CCD)测量飞秒激光光束聚焦以后不同位置的光斑半径。用加热板来控制样品温度(从常温到 350 ℃),并通过热像仪来实时监测样品温度(如图 2 所示)。硅表面微结构通过光学显微镜进行观察。

3 结果与讨论

实验中利用加热板将样品温度控制在室温(25 ℃)、50 ℃、100 ℃、150 ℃、200 ℃、250 ℃、300 ℃和 350 ℃。样品温度通过热像仪实时监测,图 2 为 50 ℃时的实时监测效果。

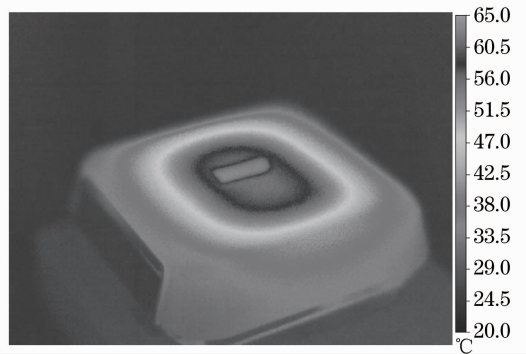


图 2 热像仪测量图片
Fig.2 Image of thermal imager

在不同温度下,通过移动样品来实现激光光束在样品表面的扫描,并通过改变样品与透镜之间的距离来改变能量密度重复实验,以便对测量数据进行统计分析。

图3是光学显微镜拍摄的不同温度下飞秒激光扫描诱导硅表面的微结构。在不同的温度下,硅片损伤区域大小、形貌以及损伤程度发生了明显的变化。光束为高斯分布,中间的光强强,边缘弱,在边缘找到恰好形成微结构的地方,其对应的能量密度就是微结构形成的阈值。分别测量对应位置下的光斑大小以及硅片表面损伤区域的宽度。根据光斑的空间分布计算硅片在不同温度下的微结构形成的阈值。

已知的飞秒光束为高斯分布,在其光斑半径之内,能量密度分布可以表述为^[22]

$$I_G(r) = I_G \exp\left(-2 \frac{r^2}{r_G^2}\right), \quad (1)$$

式中 I_G 为能量密度中心值,光斑半径 r_G 为能量密

度降为中心值的 e^{-2} 时 r 的坐标。激光能量根据能量密度在整个空间的积分求得:

$$P = \int_0^{+\infty} I(r) 2\pi r dr. \quad (2)$$

将(1)式代入(2)式可得 $I_G = \frac{2P}{\pi r_G^2}$; 由此可以得到飞秒激光光束的能量密度的分布为

$$I_G(r) = \frac{2P}{\pi r_G^2} \exp\left(-2 \frac{r^2}{r_G^2}\right). \quad (3)$$

根据 $I_G(r)$ 的表达式,测量了一定位置的光斑大小以及对应位置的飞秒激光损伤区域的宽度。通过统计分析,计算得到了不同温度下飞秒激光对样品造成明显损伤的阈值大小,如图4所示。

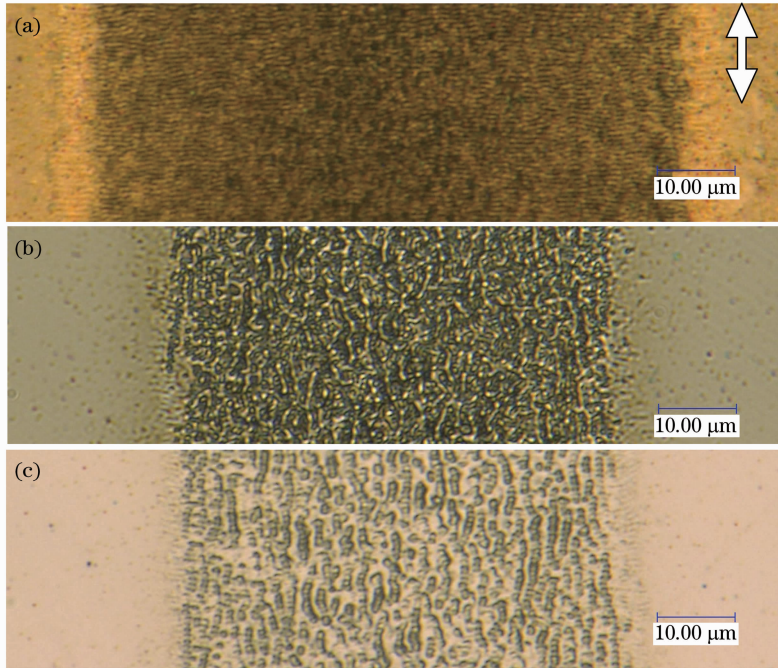


图3 不同温度下硅片的表面损伤。(a) 25 °C ;(b) 200 °C ;(c) 350 °C

Fig. 3 Surface damage feature of silicon at different temperatures. (a) 25 °C ; (b) 200 °C ; (c) 350 °C

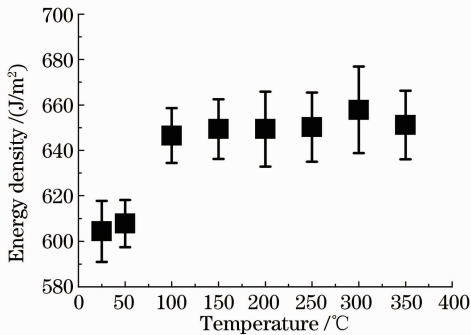


图4 硅片形成微结构的能量阈值随温度的变化关系

Fig. 4 Dependence of energy threshold on silicon surface microstructure as a function of temperature

根据图4可以看出在常温下硅片的损伤能量阈值大约为 604.36 J/m^2 。这个结果与已发表文献中的结果并不完全相符,这是由于实验所采用的飞秒脉冲激光的脉宽不同,如果将能量密度换算为功率密度,这一结果就与文献报道的基本吻合。但是随着温度的变化,硅的损伤阈值也发生相应的变化。在 350 °C 时硅的损伤阈值大约为 651.19 J/m^2 。这一变化特性目前尚未有文献报道。根据图4中硅片损伤阈值的变化趋势,可以看出在利用飞秒激光诱导形成硅表面微结构时,硅表面的损伤阈值随硅片温度的升高而增加。可能存在以下的原因:1) 通过改变温度使得硅材料的相关光学性质发生了变化,

如反射率升高,同时使硅片表面氧化层厚度增加^[23];2)超短脉冲激光对透明材料破坏的实质是材料导带电子在很短时间内迅速累积到一个临界密度,一旦导带电子超过临界密度,材料就产生破坏。而导带电子主要由雪崩电离提供。电离的强弱可以用电离率来表示。电离率虽然强烈依赖于电场,但也是温度的函数,当温度升高时,点阵散射增强,倾向于阻碍对载流子的加热,通常电离率随温度的升高而下降,从而有可能导致激光对材料损伤阈值的升高。

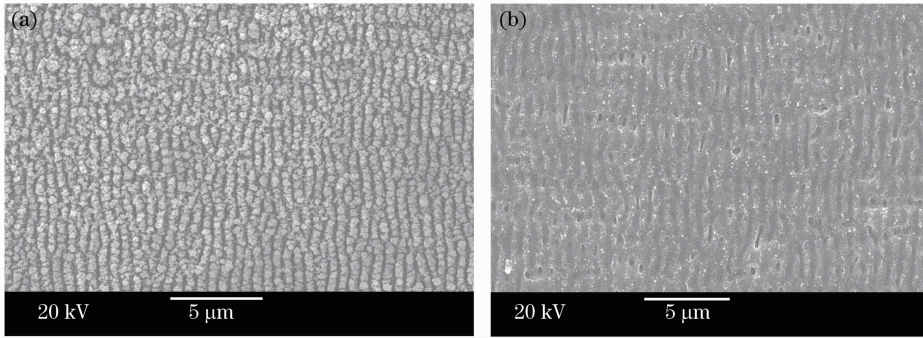


图 5 不同温度下硅表面微结构的扫描电镜图片。(a) 25 °C;(b) 300 °C

Fig. 5 SEM images of silicon surface microstructure at different temperatures. (a) 25 °C; (b) 300 °C

图 5 显示,在高温条件下,硅表面同样形成了周期性的条纹结构,但是其形成的周期性结构比常温下形成的周期性结构更加平滑,且条纹的深度变浅,表明样品硅片温度升高以后,激光对硅片的损伤程度降低。这与硅片损伤阈值的升高是相符的。关于硅表面 LIPSS 形成的机制在学术界还存在一定的争论^[2,15,24],一般认为是由于入射光与其在硅表面激发的等离子波干涉所导致的。在样品温度升高以后,激光辐照激发的载流子密度会发生改变,这可能会对激光激发产生的等离子波产生一定的影响,这样势必会导致微结构形貌上的差异。当然也可能是温度改变以后,激光与样品之间相互作用的物理机制发生了变化或者是伴随有更加复杂的物理过程。这有待于通过实验和理论研究做进一步的论证和分析。

4 结 论

介绍了在不同温度下利用钛宝石激光器输出的飞秒激光脉冲,采用扫描的方式在硅表面诱导产生的周期性表面微结构。分析比较了硅表面的损伤区域和形貌。通过对损伤区域的分析比较,发现在不同温度下飞秒激光脉冲对硅片表面的损伤程度不一样。温度升高,硅材料的损伤阈值升高,由常温下的

在图 3 中还可以发现,不同温度条件下除了硅片损伤的区域大小发生了变化,同时飞秒激光诱导形成的表面微结构形貌也发生了变化。图 3 中白色箭头表示入射激光的偏振方向。从图 3(a)中可以看到周期性的条纹结构[也称激光诱导周期性表面结构(LIPSS)],条纹方向与入射激光的偏振方向垂直,条纹周期为 550~590 nm。但是当温度升高以后,在光学显微镜下没有看到明显的周期性条纹结构,因此用扫描电镜(SEM)对样品做了进一步的观察,如图 5 所示。

604.36 J/m²上升到 350 °C 时的 651.19 J/m²,并分析了产生这一现象的可能原因。同时发现在不同温度下飞秒激光诱导硅表面形成的微结构也有明显的差异,当温度升高时条纹会出现一定程度的改变。这可能与激光作用的物理机制有关,还有待于进一步的研究分析。本文工作对研究飞秒激光与物质的相互作用有一定的参考价值,也能为将来实现硅表面微结构的控制操作提供参考。

参 考 文 献

- 1 Guo Xiaodong, Li Ruxin, Yu Bingkun *et al.*. Femtosecond laser pulses induced nanostructures on ZnO in different ablation conditions[J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(5): 1017~1020
郭晓东,李儒新,余晔鲲等.不同烧蚀条件下飞秒激光脉冲诱导 ZnO 纳米结构研究[J]. *光学学报*, 2008, **28**(5): 1017~1020
- 2 J. Sipe, J. Yong, J. Preston *et al.*. Laser-induced periodic surface structure. I. Theory[J]. *Phys. Rev. B*, 1983, **27**(2): 1141~1154
- 3 J. Young, J. Preston, H. Van Driel *et al.*. Laser-induced periodic surface structure, II. Experiments on Ge, Si, Al, and brass[J]. *Phys. Rev. B*, 1983, **27**(2): 1155~1172
- 4 J. Young, J. Sipe, H. Van Driel. Laser-induced periodic surface structure. III. Fluence regimes, the role of feedback, and details of the induced topography in germanium[J]. *Phys. Rev. B*, 1984, **30**(4): 2001~2015
- 5 Wu Tengfei, Zhou Changhe, Zhu Linwei. Periodic microstructures on chromium film introduced by femtosecond laser[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(3): 722~725
武腾飞,周常河,朱林伟.飞秒激光诱导铬膜产生周期性微结构[J]. *中国激光*, 2010, **37**(3): 722~725

- 6 Li Zhihua, Fan Jingqin, Li Punian *et al.*. Effect of laser energy accumulation on surface periodic structures induced by femtosecond laser[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(1): 68~73
李智华, 范敬钦, 李普年等. 能量累积效应对飞秒激光诱导表面周期结构的影响[J]. *中国激光*, 2010, **37**(1): 68~73
- 7 A. Y. Vorobyev, C. Guo. Antireflection effect of femtosecond laser-induced periodic surface structures on silicon [J]. *Opt. Express*, 2011, **19**(S5): A1031~A1036
- 8 T. H. Her, R. J. Finlay, C. Wu *et al.*. Femtosecond laser-induced formation of spikes on silicon[J]. *Appl. Phys. A*, 2000, **70**(4): 383~385
- 9 C. Wu, C. H. Crouch, L. Zhao *et al.*. Visible luminescence from silicon surfaces microstructured in air[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2002, **81**(11): 1999~2002
- 10 J. E. Carey, C. H. Crouch, M. Shen *et al.*. Visible and near-infrared responsivity of femtosecond-laser microstructured silicon photodiodes[J]. *Opt. Lett.*, 2005, **30**(14): 1773~1775
- 11 B. Tull, J. E. Carey, M. A. Sheehy *et al.*. Formation of silicon nanoparticles and web-like aggregates by femtosecond laser ablation in a background gas[J]. *Appl. Phys. A*, 2006, **83**(3): 341~346
- 12 A. S. Mahmood, M. Sivakumar, K. Venkatakrisnan *et al.*. Enhancement in optical absorption of silicon fibrous nanostructure produced using femtosecond laser ablation [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2009, **95**(3): 034107
- 13 J. Bonse, J. Krüger. Pulse number dependence of laser-induced periodic surface structures for femtosecond laser irradiation of silicon[J]. *J. Appl. Phys.*, 2010, **108**(3): 034903
- 14 J. Bonse, M. Munz, H. Sturm. Structure formation on the surface of indium phosphide irradiated by femtosecond laser pulses [J]. *J. Appl. Phys.*, 2005, **97**(1): 013538
- 15 M. Huang, F. Zhao, Y. Cheng *et al.*. Origin of laser-induced near-subwavelength ripples: interference between surface plasmons and incident laser [J]. *ACS Nano*, 2009, **3**(12): 4062~4070
- 16 J. Bonse, A. Rosenfeld, J. Krüger. Implications of transient changes of optical and surface properties of solids during femtosecond laser pulse irradiation to the formation of laser-induced periodic surface structures[J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2010, **257**(12): 5420~5423
- 17 M. Huang, F. Zhao, Y. Cheng *et al.*. The morphological and optical characteristics of femtosecond laser-induced large-area micro/nanostructures on GaAs, Si, and brass[J]. *Opt. Express*, 2010, **18**(S4): A600~A619
- 18 M. Shen, C. Crouch, J. Carey *et al.*. Femtosecond laser-induced formation of submicrometer spikes on silicon in water[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, **85**(23): 5694~5696
- 19 M. Shen, James E. Carey, Catherine H. Crouch *et al.*. High-density regular arrays of nanometer-scale rods formed on silicon surfaces via femtosecond laser irradiation in water [J]. *Nano Lett.*, 2008, **8**(7): 2087~2091
- 20 Yuan Chunhua, Li Xiaohong, Tang Duochang *et al.*. Silicon surface microstructures induced by femtosecond laser pulses in different background gases[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2010, **22**(11): 2749~2753
袁春华, 李晓红, 唐多昌等. 不同气氛下飞秒激光诱导硅表面微结构[J]. *强激光与粒子束*, 2010, **22**(11): 2749~2753
- 21 Li Ping, Wang Yu, Feng Guojin *et al.*. Study of silicon microstructuring using ultra-short laser pulses[J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(12): 1688~1691
李平, 王煜, 冯国进等. 超短激光脉冲对硅表面微构造的研究[J]. *中国激光*, 2006, **33**(12): 1688~1691
- 22 Wang Weiping, Lü Baida, Luo Shirong. Influence of laser spatial profile on laser heating material [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2001, **13**(3): 313~316
王伟平, 吕百达, 罗时荣. 激光束光强分布对材料激光加热的影响[J]. *强激光与粒子束*, 2001, **13**(3): 313~316
- 23 G. Jellison, Jr., F. Modine. Optical functions of silicon between 1.7 and 4.7 eV at elevated temperatures[J]. *Phys. Rev. B*, 1983, **27**(12): 7466~7472
- 24 J. Bonse, S. Baudach, J. Krüger *et al.*. Femtosecond laser ablation of silicon: modification thresholds and morphology[J]. *Appl. Phys. A*, 2002, **74**(1): 19~25