

文章编号: 0253-2239(2004)02-239-4

# 脉冲激光辐照硅材料引起表面波纹的特性研究\*

袁永华<sup>1,2</sup> 刘颂豪<sup>2</sup> 孙承伟<sup>1</sup> 廖常俊<sup>2</sup> 王伟平<sup>1</sup> 张大勇<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> 中国工程物理研究院流体物理研究所, 绵阳 621900)  
(<sup>2</sup> 华南师范大学量子电子学研究所, 广州 100008)

**摘要:** 叙述了激光与材料相互作用过程中引起相干受激光散射的机制,以及形成材料表面波纹的特性。在激光波长 1.06  $\mu\text{m}$ 、能量 15 mJ、光斑直径 2 mm、脉冲半峰全宽约 10 ns 和入射方向为布儒斯特角的条件下,进行了脉冲激光辐照硅材料形成表面波纹的实验研究。在脉冲激光辐照硅材料表面功率密度略大于材料损伤阈值的条件下,发现了硅材料表面形成的平行等间距直线条纹结构。用光学显微镜和原子力显微镜分别测量了被辐照硅材料表面的波纹形貌特征。在假设硅材料表面波纹的产生与声波在材料中的传播速度有关的条件下,由声波传播速度和激光辐照硅材料的脉冲宽度较好地解释了材料表面形成条纹的宽度,并认为在形成表面波纹的过程中,热应力起主要作用。

**关键词:** 光与物质的相互作用; 脉冲激光; 相干受激光散射; 硅材料; 损伤阈值; 表面波纹

中图分类号: TN24 文献标识码: A

## Study of the Characteristics of the Surface Ripple on Si Material Irradiated by Pulsed Laser

Yuan Yonghua<sup>1,2</sup> Liu Songhao<sup>1</sup> Sun Chengwei<sup>1</sup> Liao Changjun<sup>2</sup>

Wang Weiping<sup>1</sup> Zhang Dayong<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang 621900  
(<sup>2</sup> Institute of Quantum Electronics, South China Normal University, Guangzhou 510631)

(Received 31 December 2002)

**Abstract:** The mechanism of coherent stimulated light scattering and the characteristics of the surface ripple in the laser interaction with materials is described. Experimental research on the surface ripple with Si material irradiated by pulsed laser, is carried out with 1.06  $\mu\text{m}$  laser wave length, 15 mJ energy, 2 mm spot diameter, about 10 ns pulse width and Brewster angle incidence. The surface ripple's modality of the laser-induced Si material is measured by optical microscope and atomic microscope. A set of liner ripple structure with parallel, equal spaces is found at the surface of silicon material after pulsed laser irradiation under a little higher laser intensity than damage threshold. If this ripple phenomena is related to sound wave velocity in material, the ripple period could be well explained according to the sound wave velocity and pulse duration, and thermal stress is a main role in the formation of surface ripple.

**Key words:** interaction between light and matter; pulsed laser; coherent stimulated light scattering; Si material; damage threshold; surface ripple

## 1 引 言

在激光与材料的耦合机理和效应研究中,人们通过大量的实验发现:当激光辐照材料表面的功率密度在损伤阈值附近时,往往会形成自发的、周期性的、表面波纹结构(LIPSS)。激光辐照材料形成表

\* 国家“八六三”激光技术领域和中国工程物理研究院基金资助课题。

E-mail: yuanyh7693@sina.com

收稿日期:2002-12-31

面周期结构波纹的机制复杂,规律很难掌握<sup>[1~4]</sup>。有人认为表面极化波起源于材料表面的不规则,它与入射激光之间产生的干涉调制了材料表面处的光强,以及固体-液体界面的传播速度,使固体-液体界面起伏不平,熔化层的深度和折射指数也被调制,提高了表面极化波的散射效率,并产生正反馈的调制,导致表面极化波和波纹幅度成指数增长<sup>[5]</sup>。也有人认为表面波是溶液的表面张力所形成的<sup>[6]</sup>。也有人认为表面张力梯度引起了波纹<sup>[7]</sup>,熔化材料温度越高,表面张力越小。在受调制的激光辐照下,材料溶液表面高温区的液体被拉向低温区。

本文叙述了激光辐照材料引起相干受激光散射过程的机制,以及形成材料表面波纹的特性。开展了脉冲激光辐照硅材料表面产生波纹的实验研究,分析了材料表面波纹生成与激光功率密度、材料特性的关系。

## 2 相干受激光散射的机制

在激光与材料相互作用过程中,可能产生各种能量耦合机制,相干受激光散射机制就是其中之一。相干受激光散射过程可以由一束相干光或两束相干光产生。当一束相干光入射时,首先产生自发散射,这种自发散射光在入射光束内与入射光束差频激发一个具有确定相位的声子,声子继续散射入射光子得到新的散射光子,散射光子的频率与相位及传播方向都与前面产生的散射光子相同。即在入射光的传输过程中可以获得散射光的相干放大,在介质中形成两束相干光,它们的差频信号也是相干的,激发的声子也应该是相干的。由两束激光同时入射介质,当差频正好与介质的某个声子共振时,可以更有效地在介质中产生相干声子。如果产生的相干声子为光学声子称为受激拉曼散射,声学声子称为受激布里渊散射。受激瑞利散射是弹性散射,光与材料之间没有能量交换。

当一束强激光辐照材料表面时,其耦合过程非常复杂,产生的效应除了激光与材料直接耦合外,同时还存在着热应变产生的压电效应、热电效应和温差效应等,这些效应都对材料的极化强度产生影响。如只考虑压电效应,材料的极化强度为

$$\mathbf{P}_\alpha = \sum_{\beta r} e_{\alpha, \beta r} \mathbf{u}_{\beta r} + \sum_{\beta} x_{\alpha \beta} \mathbf{E}_\beta, \quad (1)$$

式中  $e_{\alpha, \beta r}$  为压电张量常数,  $x_{\alpha \beta}$  为极化率张量系数,  $\mathbf{u}_{\beta r}$  为应变张量,  $\mathbf{E}_\beta$  为外电场强度。在受约束的边界条件下,横向驻波也是应变张量  $\mathbf{u}_{\beta r}$  的解。因此, (1)

式的  $\mathbf{u}_{\beta r}$  在激光加热作用下,可能以驻波的形式存在,材料表面的极化强度可能受到固定的空间调制,并在材料表面出现光栅效应。驻波是表面产生受激光散射过程的起源,并在受激光散射过程中不断得到放大。这种受激光散射光是空间调制的、相干的,相干散射光波与入射激光之间的干涉使辐照到材料表面的光强产生周期性的调制,当入射激光强到略大于材料熔化阈值时,可能在材料表面产生波纹和褶皱。

由于(1)式中  $\mathbf{P}_\alpha$  在材料表面以波的形式存在,又称为表面极化波。这种表面极化波的偏振方向在各向同性和立方结构材料与激光电场的偏振方向一致。根据受激光散射过程中的波矢匹配条件  $\mathbf{k}_{in} = \mathbf{k}_{scat} + \mathbf{k}_{stress}$ , 入射波、散射波和热应力波位于同一平面。由于光波为横波,其激发的热应力波也是横波,即热应力波的偏振方向垂直于它的波矢  $\mathbf{k}_{stress}$ , 因此材料表面形成波纹或褶皱的纹路垂直于入射光的偏振方向。

## 3 实验系统和结果

脉冲激光辐照硅材料形成表面波纹的实验系统如图1所示。图中激光器为波长  $1.06 \mu\text{m}$ 、脉冲半宽度约  $10 \text{ ns}$  和偏振方向为布儒斯特角输出的 Q 开关-Nd:YAG 脉冲激光器。实验样品为表面抛光的硅材料。光束分析仪用于实时监测激光辐照在实验样品上的光斑尺寸和强度分布。能量计用于实时检测激光器输出能量。用光学显微镜和原子力显微镜(AFM)观察激光辐照硅材料后表面波纹的结构和形貌特征。

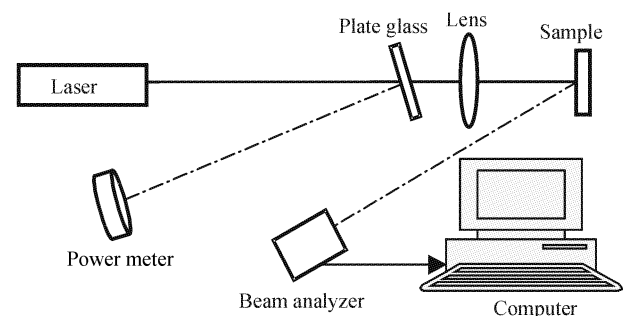


Fig. 1 Experimental system of ripple formed by laser irradiating Si material

在激光波长  $1.06 \mu\text{m}$ 、能量  $15 \text{ mJ}$ 、激光在靶面光斑直径  $2 \text{ mm}$ 、脉冲半峰全宽约  $10 \text{ ns}$  和偏振方向为布儒斯特角的条件下,图2给出脉冲激光辐照硅材料引起表面损伤形貌和形成的表面波纹结构。从图2中可以看出:在硅材料损伤区邻近表面存在着

明显凸起的平行等间距波纹,产生表面波纹的激光

辐照强度在硅材料损伤阈值附近。

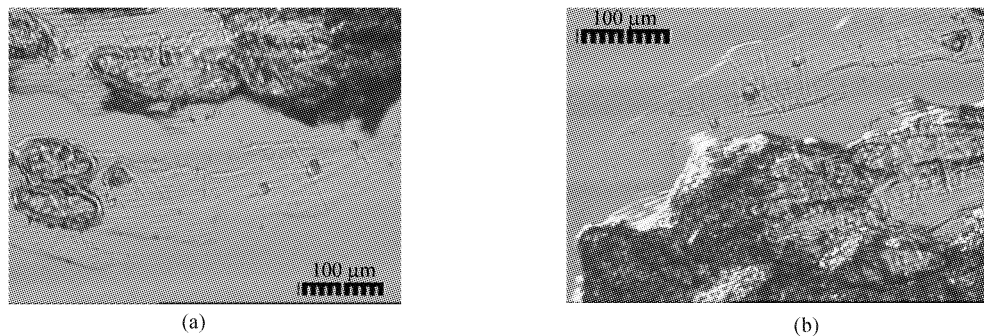


Fig. 2 Pattern of the ripple when Si material is irradiated by pulsed laser. (a) Ripple in the margin area of the partial damage, (b) Ripple in the margin area of the partial damage

材料表面产生波纹的起因是激光在材料缺陷或尘埃粒子上的散射。由于散射光与入射激光都是相干的,彼此干涉后,受到调制的光辐照在材料表面上形成干涉图案。在某一方向的干涉效应与入射光束的偏振态有关。在材料的光滑表面上,可以观察到等间距的平行条纹。条纹与入射光束的偏振方向平行。

受到调制的光辐照在材料表面上形成波纹的基本过程是:在激光辐照下材料熔化,产生形变,然后又重新固化,形变也随之“冻结”。产生形变的机理与吸收的光通量,以及材料特性有关。表面形变是最常见,也是最有效的散射体,但是“潜藏的”图形,像晶格温度或自由载流子密度的横向变化,似乎也可能导致某种程度的散射,即使对几何光滑的表面也是如此。无论初态如何,来自不同散射源的散射场总要发生相互作用,波纹的衍射又产生二次波纹。最后的图形包含在几个间隔频率上的傅里叶分量中。这样,一旦一种条纹被刻在材料表面上,它就能长久地与后续光波相干,使入射激光完全地或部分地叠加在上面。

用原子力显微镜(AFM)测量脉冲激光辐照硅材料的表面粗糙度,得到硅材料表面形成波纹对应的波峰-波谷,如图3所示。从图中可以得出:在脉冲激光辐照硅材料后,表面产生了凹凸状形变的周期性结构波纹,波纹周期约为 $8.3\ \mu\text{m}$ ,波纹平均幅度约为 $8\ \text{nm}$ 。

此外,还有一种使硅材料熔化态产生表面波纹的根源,可能就是表面氧化。它可以把固体驻留在熔化层表面,使表面变得像牛奶那样起皱。脉冲激光辐照硅材料后,用光学显微镜观察熔融区域,得到的表面起皱典型波纹图案,如图4所示。从图中可

以看出:硅材料熔融区起皱波纹的间隔约为 $1\ \mu\text{m}$ 。但不是平行直线波纹。

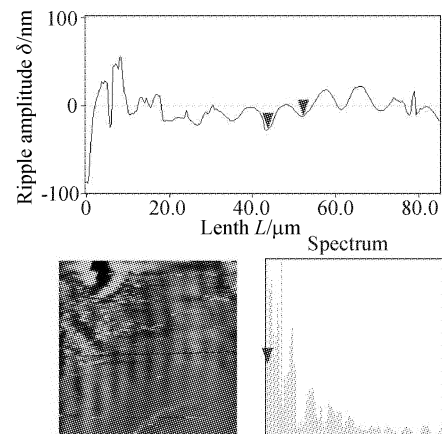


Fig. 3 Wave crest and roughness of the ripple when Si material is irradiated by pulsed laser

#### 4 讨论和结论

当脉冲激光能量密度接近或在硅材料损伤阈值附近时,从图2和图3给出被脉冲激光辐照后硅材料的表面波纹结构特征可以看出:在靠近硅材料损伤区边缘形成的表面波纹是激光的散射、干涉、衍射和热变形机理起作用。从显示的波纹周期可以看出与激光辐照硅材料时间(激光脉冲全宽度)有关。如果认为硅材料表面波纹的产生与声波在材料中的传播速度有关,由声波传播速度约为 $3 \times 10^3\ \text{m/s}$ ,以及图3给出的波纹周期 $8.3\ \mu\text{m}$ ,得到在脉冲激光辐照硅材料的时间为 $27\ \text{ns}$ ,可实现激光脉冲对材料溶液的高频共振激发。激光辐照时间的估算数值与实验中使用的激光脉冲全宽度基本符合,因此可以认为在形成表面波纹的过程中热应力起主要作用。

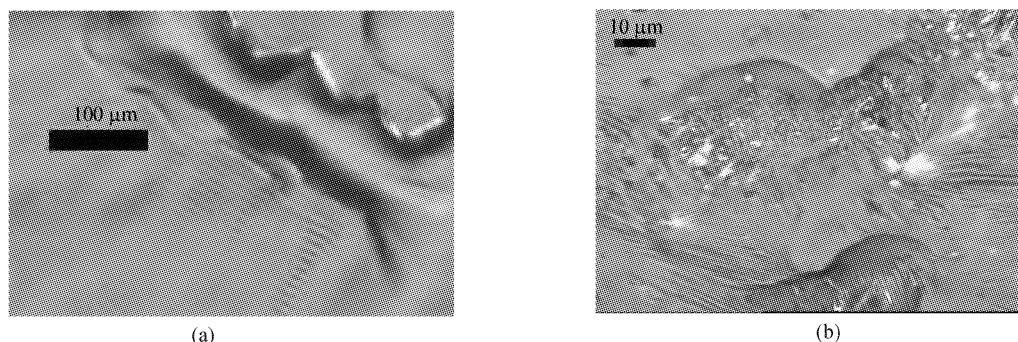


Fig. 4 The pattern of crinkly ripple in the melting area of Si material irradiated by pulsed laser. (a) Crinkly ripple in the melting area of Si material, (b) Crinkly ripple in the melting area of Si material

当脉冲激光对硅材料的辐照强度远远高于熔化阈值时,就会发生均匀的熔化,而熔化温度的横向变化所产生的力,将波纹固定在硅材料表面上。液体的表面张力随着温度的升高而减小,而且液体有从较热的区域向较冷的区域扩张的趋势。因此,脉冲激光辐照硅材料表面产生凸凹状形变波纹,波纹周期约为  $1\ \mu\text{m}$ ,并近似满足干涉方程  $\lambda = \lambda_0 / (1 - \sin^2 \theta)^{1/2}$ <sup>[8]</sup>,因此可认为在波纹的形成过程中光的干涉效应起主要作用。

#### 参 考 文 献

- 1 Young J F, Preston J S, van Driel H M *et al.*. Laser induced periodic surface II: Experiments on Ge, Si, Al and brass. *Phys. Rev. (B)*, 1983, **27**(2):1155~1172
- 2 Demchuk A V, Labunov V A. Surface morphology and structure modification of silicon layers induced by nanosecond laser radiation. *Appl. Sur. Sci.*, 1995, **86**: 353~358
- 3 Yu J J, Yu Y G. Effects of rapid thermal annealing on ripple growth in excimer laser-irradiated silicon-dioxide/silicon substrates. *Appl. Sur. Sci.*, 2000, **154~155**:670~674
- 4 Wang Weiping, Lu Baida, Liu Cangli. Laser induced ripples on the surface of optical devices. *Laser & Optoelectronics Progress* (激光与光电子学进展), 2002, **39**(6):13~19
- 5 Osgood R M, Ehrlich D J. Optically induced microstructures in laser-photodeposited metal films. *Opt. Lett.*, 1982, **7**(8):385~387
- 6 Gorodetsky G, Kozyaka T G, Melcher R L *et al.*. Calorimetric and acoustic study of ultraviolet laser ablation of polymers. *Appl. Phys. Lett.*, 1985, **46**(9):828~830
- 7 Lemons R A, Boesh M A. Periodic motion of the crystallization front during beam annealing of Si films. *Appl. Phys. Lett.*, 1981, **39**(4):343~345
- 8 Prokhorov M A, Konov I V. *Laser Heating of Metals*. New York: IOP Publishing Ltd., 1990. 115