

引用格式: SHI Huiqiang, YAO Qian, YIN Weiyi, et al. Study on Polarization Dependence of Ultrafast Combination Pulse Ablation on Silicon Surface (Invited)[J]. Acta Photonica Sinica, 2023, 52(7):0752304

史慧强,姚倩,尹唯一,等. 超快复合脉冲烧蚀硅表面的偏振依赖性研究(特邀)[J]. 光子学报, 2023, 52(7):0752304

超快复合脉冲烧蚀硅表面的偏振依赖性研究 (特邀)

史慧强¹, 姚倩¹, 尹唯一¹, 苏子怀¹, 余江¹, 宋娟², 林贤¹, 戴晔¹

(1 上海大学 物理系, 上海 200444)

(2 江苏大学 材料科学与工程学院, 镇江 212013)

摘要:以晶面 $\langle 100 \rangle$ 的硅片为研究对象,使用重复频率 1 kHz 的超快复合双脉冲作为激发工具,通过研究双脉冲之间的偏振夹角、延迟时间和脉冲数对周期性结构面积的影响,探究引起周期性结构演化的非线性电离动力学。实验结果表明,在激光能量密度为 0.23 J/cm^2 、脉冲组合为 100 个的复合脉冲辐照条件下,正交偏振诱导的结构面积最小,相比于其他入射形式下诱导的最大面积减小率约为 45%,这是因为局域场的反复调制抑制了周期性结构边缘烧蚀阈值的降低。在正交偏振时,随着两束脉冲之间延迟时间的改变,通过观察诱导结构面积变化可以分析从电子电离到物质喷发的连续过程。该复合脉冲调控技术可为研究超快激光诱导半导体表面周期性结构的偏振依赖性与电子电离效率提供参考,进一步的改进有望实现超衍射极限结构的快速诱导。

关键词:超快光学;超快复合脉冲;偏振依赖性;局域场调控;硅;电离过程

中图分类号:O437

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20235207.0752304

0 引言

自激光发明以来,有大量的研究关注于激光与硅的相互作用机制^[1]。特别是 20 世纪 80 年代超快激光器的发明,研究人员针对其在硅表面诱导周期性结构(Laser Induced Periodic Surface Structures, LIPSS)的机制及应用已开展了集中研究^[2-9]。从早期通过扫描电子显微镜观察硅表面周期性纳米结构^[2]和单个脉冲烧蚀出的环形坑^[3],到如今通过超快成像技术直接观察 LIPSS 结构的产生过程^[4],并对其机制进行仿真模拟^[5],随着研究逐步深入,LIPSS 结构也发展了一些新的应用,如亲疏水表面制备^[6]、“黑硅”^[7]、选择性着色^[8]、大面积商用光栅^[9]等。尽管超快激光加工硅表面 LIPSS 结构的研究已经开展了较长时间,但在大面积结构制备中仍然存在加工效率低等问题,因此提升结构制备效率是一个亟待解决的问题。对此,已有一些探索可实现更高效和多样性的 LIPSS 制备^[10]。当前仅通过调控单束飞秒脉冲的激光参数对加工效率的提高十分有限,使用复合双脉冲组合已经被证明是一种提高加工质量^[11]和效率^[12-13]的有效策略。对于复合双脉冲加工,两束脉冲之间的偏振夹角和延迟时间^[14]会对 LIPSS 结构的加工效率产生较大的影响,JIANG Lan^[15]和 YANG Jianjun^[16]等均使用正交偏振提升了 LIPSS 结构的大规模制备效率。本课题组使用脉宽组合为 120 fs+2 ps、子脉冲能量比为 1:1 的飞秒(fs)+皮秒(ps)复合双脉冲(Fs+Ps Double-Pulse Sequence, FPDPS)辐照在 ZnO 表面,在两束脉冲偏振方向相同的情况下,发现单个 FPDPS 中子脉冲的到达顺序会影响低空间周期或高空间周期波纹的形成,这种 FPDPS 为增强能量沉积提供了一种新的方法^[17]。

在此基础上,本文进一步探索了复合双脉冲组合辐照硅表面诱导微结构随偏振夹角变化的动力学过程。实验中使用一台激光器实现了不同脉冲组合的产生,通过调控两束脉冲之间的偏振夹角和延迟时间,

基金项目:国家自然科学基金(Nos. 12274280, 11774220, 11974147)

第一作者:史慧强, huiqiang1631@163.com

通讯作者:戴晔, yedai@shu.edu.cn

收稿日期:2023-03-29;录用日期:2023-05-15

<http://www.photon.ac.cn>

观察到诱导LIPSS结构的面积变化,从局域场调控的角度分析了FPDPS辐照硅表面的非线性电离过程,并进行了验证实验。结果表明,LIPSS结构的面积随偏振夹角的增大而减小,是因为稳定局域场反复调制抑制了诱导结构边缘的烧蚀阈值降低,而辐照中心区域几乎不受影响。

1 实验原理与方法

实验所使用的材料是单面抛光的硅片 $\langle 100 \rangle$,尺寸规格为 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 0.7\text{ mm}$ 。FPDPS诱导的硅表面LIPSS结构尺寸和形貌分别由光学显微成像系统(Nikon ECLIPSE 80i)和扫描电子显微镜(Scanning Electron Microscope, SEM)(Hitachi, SU5000)测量得到。

超快复合脉冲加工系统原理如图1所示。该系统主要由以下元件组成:激光器、格兰棱镜(GP)、反射镜(M)、分束镜(BS)、滤波片(ND)、延迟线(Delay line)、中空回射镜(RF)、光栅(G)、1/2波片(HWP)、CCD相机、物镜(Objective)、三维位移平台(X-Y-Z Platform)。实验所使用的激光器为Spectra-Physics公司生产的钛蓝宝石飞秒激光器,其重复频率为 1 kHz 、波长为 780 nm 、脉冲宽度为 120 fs 。实验中由激光器输出的飞秒脉冲经格兰棱镜后由分束镜分为两束偏振方向一致的线偏光,其中一束子脉冲经过由导轨和反射镜组成的延迟线,可以通过调节延迟线的位置来控制两束脉冲之间的延迟时间;另一束子脉冲经过光栅和中空回射镜后被展宽为 1.4 ps ;两子脉冲合束后被导入微加工系统($5\times$,数值孔径 $\text{NA}=0.15$)中对硅材料表面进行辐照。实验中定义皮秒脉冲先到达材料表面为正延迟。

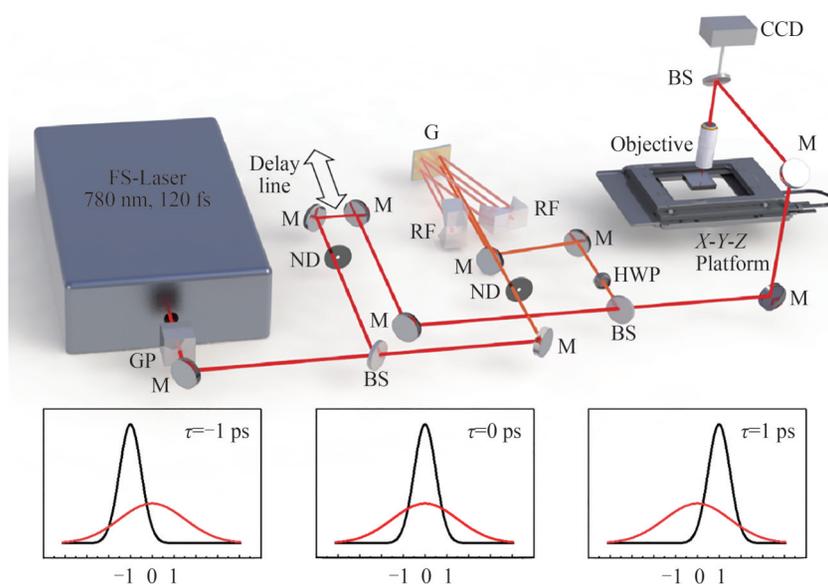


图1 超快复合脉冲加工系统原理

Fig. 1 Schematic diagram of ultrafast combination pulse machining system

2 实验结果及讨论

2.1 超快复合脉冲偏振夹角和延迟时间对LIPSS结构面积的影响

使用脉宽为 $120\text{ fs} + 1.4\text{ ps}$ 、脉冲数为100个、能量比为1:1、能量密度为 0.23 J/cm^2 的复合脉冲组合进行辐照实验,通过控制快门开关时间来控制脉冲数,所用能量密度介于硅的融化和烧蚀阈值之间^[4]。如图2所示,可观察到LIPSS条纹的周期在 $600\sim 700\text{ nm}$ 附近^[18],并且单光束诱导的条纹方向与激光偏振方向垂直,且随激光偏振方向改变,该现象与2014年JIANG Lan等^[19]的观察结果一致。同时,实验发现使用飞秒或皮秒单光束脉冲辐照产生的LIPSS条纹取向随激光偏振方向的改变而改变,但LIPSS面积几乎不变,在FPDPS正交偏振时产生的LIPSS面积显著减小。

进一步改变飞秒与皮秒脉冲之间的偏振夹角和延迟时间,研究了这两个参数对LIPSS面积的影响。实验中延迟时间范围为 $\pm 50\text{ ps}$,在同一激光参数下重复六次实验后对测量面积取平均值,并计算其标准误差。图3(a)展示了延迟时间分别为 $\pm 4\text{ ps}$ 和 $\pm 40\text{ ps}$ 时的结构面积和偏振夹角的依赖曲线。随着两束脉冲间的

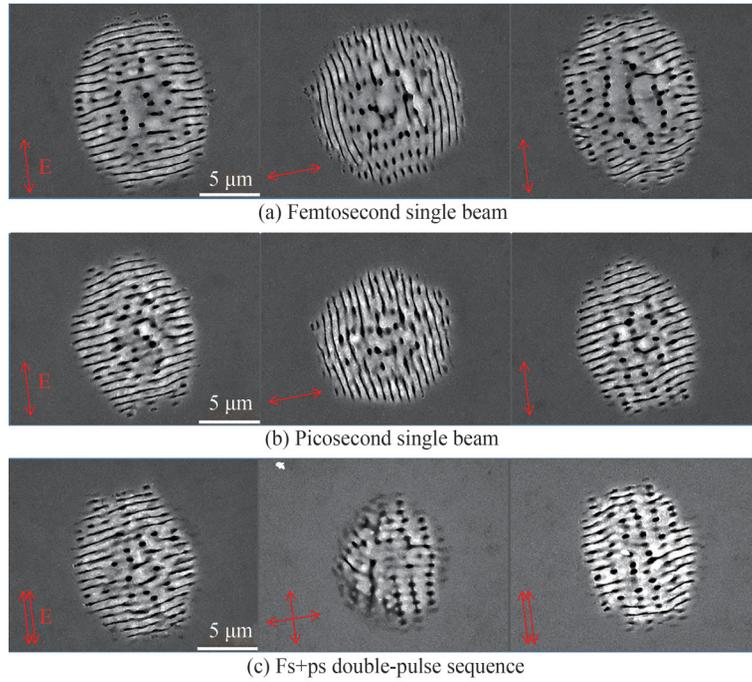


图2 LIPSS 结构随脉冲偏振取向变化的 SEM 图像

Fig. 2 SEM images of LIPSS structures with different pulse polarization orientations

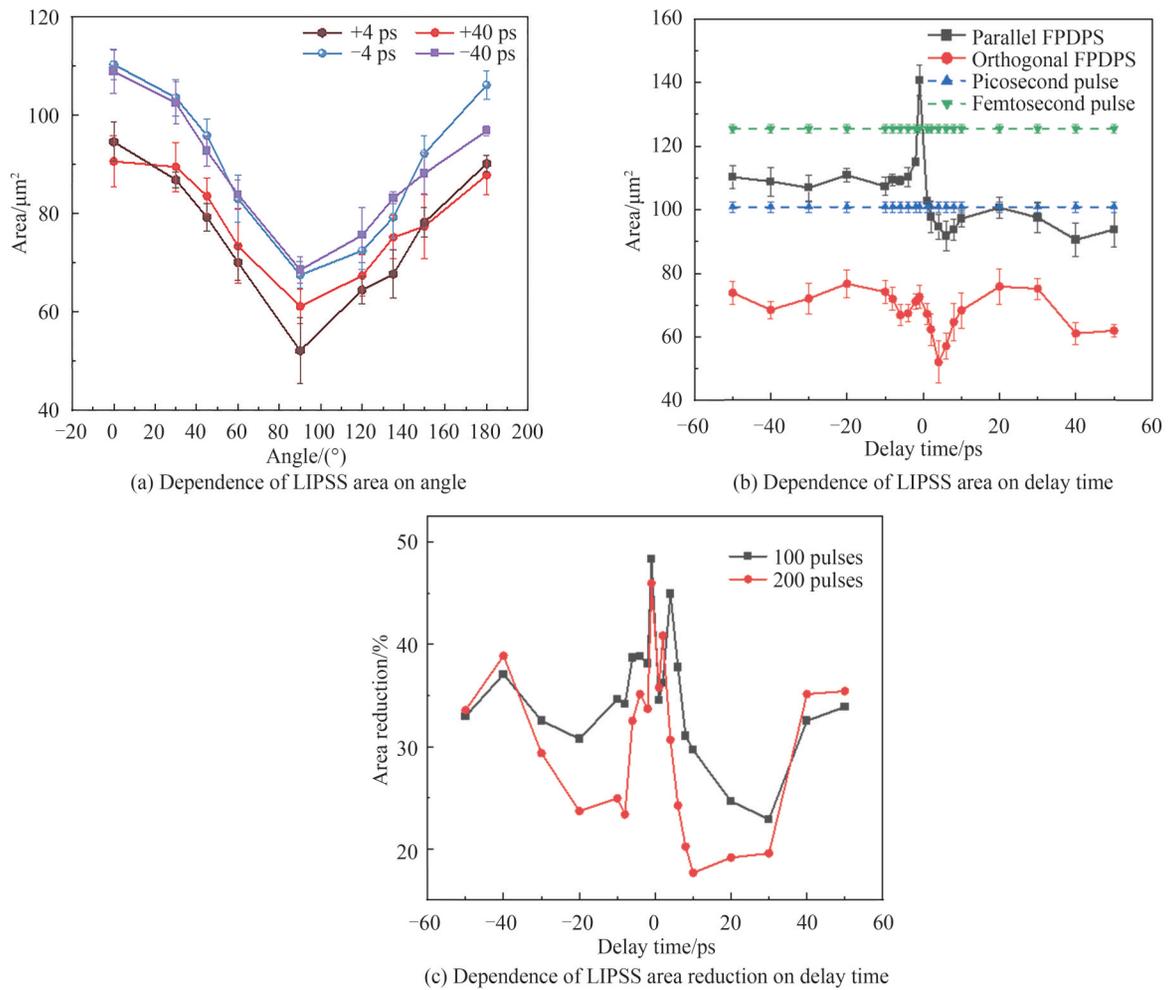


图3 LIPSS 面积随偏振夹角和延迟时间的变化

Fig. 3 The LIPSS area varies with polarization angle and delay time

偏振夹角增大, LIPSS 面积逐渐减小, 在正交偏振时面积达到最小。实验发现在 ± 50 ps 内, 各个延迟时间下的结构面积均有“V”字形的变化规律。在偏振夹角增大的过程中, LIPSS 结构面积随延迟时间的变化整体降低, 逐渐从平行偏振降低到正交偏振的变化趋势, 图 3(b) 展示了在平行偏振和正交偏振时 LIPSS 结构面积和延迟时间的依赖曲线, 并与飞秒和皮秒单光束诱导结构的面积进行了对比。在总脉冲能量密度相同的情况下, 飞秒单光束诱导的 LIPSS 面积最大, 平行偏振下 FPDPS 在负延迟时 LIPSS 面积介于飞秒单光束和皮秒单光束之间, 而在正延迟时诱导的 LIPSS 面积比皮秒单光束略小; FPDPS 在正交偏振时的 LIPSS 面积最小, 并且随延迟时间的变化有明显的规律。与平行偏振相比, 计算了正交偏振时诱导的 LIPSS 面积减小的比率, 面积减小率定义为: $(\text{平行偏振 LIPSS 面积} - \text{正交偏振 LIPSS 面积}) / \text{平行偏振 LIPSS 面积}$ 。如图 3(c) 所示, 面积减小率随延迟时间的变化规律与正交偏振时的变化规律比较相似, 但是随着脉冲数的增加, 面积减小率随之减小。

2.2 超快复合脉冲诱导 LIPSS 结构面积变化的电子动力学过程

对于两束脉冲偏振方向平行时诱导 LIPSS 结构的变化规律, 本课题组已进行过相关研究^[17]。在负延迟时, 峰值功率较高的飞秒脉冲先到达材料表面时, 与皮秒脉冲相比会产生更强的光致电离, 激发出更高密度的自由电子, 这些自由电子在弛豫过程中, 部分“种子”电子能促进下一脉冲能量的吸收。图 3(b) 中平行偏振在延迟时间为 -1 ps 时出现了一个极高的峰值, 是由于飞秒脉冲激发出大量自由电子, 一些电子作为“种子”通过逆轫致辐射效应有效地吸收皮秒脉冲能量, 这一电子加速过程将导致雪崩电离, 进一步增加电子密度。且长脉冲延长了光子-电子相互作用的时间, 促进了后一束皮秒脉冲能量的吸收, 因此出现了一个极高的峰值。在正延迟时, 皮秒脉冲先到达材料表面, 由于皮秒脉冲的峰值功率较低, 其光致电离较弱, 导致更多的能量以热的形式消散, 且此时飞秒脉冲的窄脉宽对利用“种子”电子促进脉冲能量吸收的效果并不明显, 所以平行偏振时负延迟的 LIPSS 面积比正延迟大。在负延迟时, LIPSS 结构的面积介于飞秒单光束和皮秒单光束诱导结构的面积之间, 而在正延迟时 LIPSS 面积比皮秒单光束略小, 这是因为与单脉冲序列相比, 双脉冲序列在与材料相互作用的过程中, 更多的能量沿激光辐照方向沉积在材料的内部^[20]。

图 4 展示了偏振夹角影响 LIPSS 结构面积的示意图。线性偏振的超快脉冲辐照在材料表面, 会沿电场方向产生对应的局部强度分布^[21], 随着脉冲数的增加, 局域场增强会使电离过程高度局域, 会进一步反馈增强局域场^[22-23], 而纳米等离子体在线性极化电场形成时自然生长成纳米平面, 形成的周期性结构又会促进局域场增强^[24], 这是一个正反馈机制, 导致了明显的孵化效应。图 4(a) 中第一个脉冲在中心形成一个 LIPSS 结构, 并产生一个受偏振调制的局域场, 两束脉冲偏振方向相同时, 后续脉冲会逐渐增强初始局域场, 形成一个椭圆形的稳定局域场强分布, 这种场强分布通过正反馈机制又促进 LIPSS 结构的生长。但是两束脉冲偏振方向不同时, 第二个脉冲的到来会形成新的局域场, 并重新调制前一脉冲形成的局域场, 这个过程中会

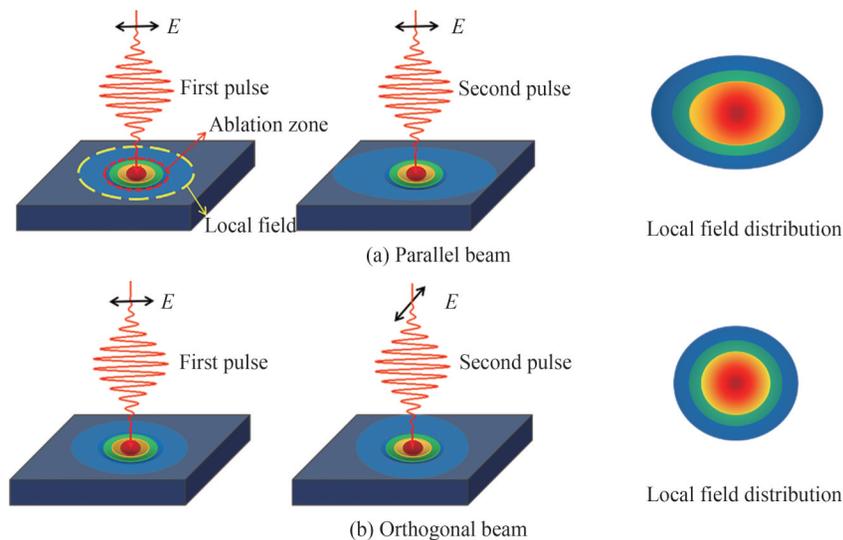


图 4 局域场调控示意图

Fig. 4 Schematic diagram of local field modulation

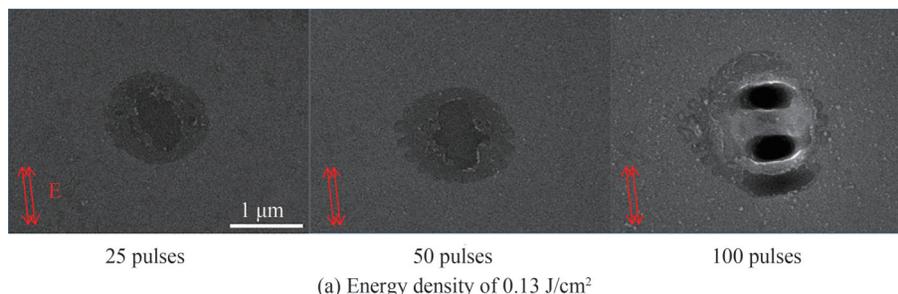
有一定的能量耗散,使整体局域场强度降低,但辐照中心的局域场强度几乎不受影响。如图4(b)所示,在正交偏振时会形成一个圆形的局域场强分布。因为激光辐照产生的瞬态局域场增强效应会促进材料烧蚀阈值的降低^[21],所以局域场的反复调制不但会抑制正反馈机制的作用,还会抑制烧蚀阈值下降的效果,而这种影响主要集中在激光辐照区域的边缘,所以这种LIPSS结构面积随偏振夹角的增大而减小的现象,是因为局域场的反复调制抑制了LIPSS结构边缘烧蚀阈值的降低。

具体来说,在正交偏振时,第一个脉冲激发出大量的自由电子,产生一个局域场,并使电子动能增大,在这个过程中电子与晶格发生碰撞,逐渐将能量转移到晶格中,使晶格升温,这个时间通常在皮秒量级^[5]。此时第二个脉冲的到来会在垂直方向上重新激发电子,产生一个新的局域场,这一过程会对前一脉冲形成的局域场进行调制。在 ± 1 ps的时间内电子-晶格能量的交换还比较少,在局域场重新调制的过程中主要消耗的是电子的能量。在 $\pm 1\sim 5$ ps的时间内晶格温度会随着时间逐渐升高,并发生晶格扭曲形变,在此期间第二脉冲的到来产生新的局域场并对电子密度分布进行重新调制,不但消耗了部分电子能量,而且更多的能量会通过晶格振动形成热耗散,这种耗散主要集中在激光辐照区域的边缘,因此图3(b)中的LIPSS结构面积在 $\pm 1\sim 5$ ps的延迟时间内出现下降的趋势。在负延迟下,飞秒脉冲先到达时,后续皮秒脉冲可以通过前期激发的较高密度“种子”电子吸收能量,减少局域场重新调制产生的能量耗散,因此负延迟的下降趋势没有正延迟明显。在 $\pm 5\sim 20$ ps的时间内,晶格通过载流子-声子散射逐渐被加热,此时的晶格温度已经开始对材料结构产生实质性的影响,材料逐渐开始融化^[25-26],在第二脉冲到来并产生新局域场的过程中,虽然会耗散部分能量,但前一脉冲对材料产生的影响会被保留下来,所以图3(b)中的正交偏振在 $\pm 5\sim 20$ ps的延迟时间内,随着延迟时间的增加,LIPSS面积出现逐渐扩大的趋势。在 $\pm 20\sim 30$ ps的延迟时间内,激光辐照区域的材料一直处于液态。在 ± 30 ps以后,激光辐照区域的材料开始蒸发,而 ± 38.4 ps以后物质开始喷发并持续到微秒^[27],抑制后一脉冲能量的吸收。相比于平行偏振,正交偏振时这种影响更为明显。所以图3(b)中正交偏振时,延迟时间在 ± 30 ps以后出现先降低后稳定的趋势。

根据孵育模型,材料的烧蚀阈值随着施加于同一点的激光脉冲数的增加而降低,但是这种降低并不是线性的,当脉冲数足够大时,烧蚀阈值逐渐稳定^[28]。所以图3(c)中随着脉冲数的增加,在平行偏振与正交偏振两种情况下,多脉冲辐照后材料的烧蚀阈值逐渐接近,两种情况的差异逐渐减小,面积减小率随之降低。并且随着脉冲数的增加,诱导结构的面积逐渐接近激光光斑大小,受光斑大小限制,其面积很难继续增大,所以平行偏振和正交偏振两种情况下诱导结构的面积大小逐渐接近。

2.3 紧聚焦超快复合脉冲的诱导微结构

根据上述解释,设计了实验对其进行验证。如图5所示,使用FPDPS在50倍物镜($NA=0.55$)、延迟时间为2 ps、能量密度为 0.19 J/cm^2 的实验条件下辐照硅表面。实验结果表明,平行偏振时激光诱导的结构面积更大,虽然正交偏振时诱导的结构面积较小,但其辐照区域中心的诱导结构与平行偏振比较接近。正交偏振时辐照区域边缘的电离强度与平行偏振相比明显降低,与平行偏振、 0.13 J/cm^2 达到的辐照效果较为接近。平行偏振时会形成规则的周期性孔洞,而正交偏振时只在中心形成了一个直径约为580 nm的孔洞,这很好地验证了2.2节提出的正交偏振时第二个脉冲破坏第一个脉冲形成的局域场,使整体局域场强度降低,但辐照区域中心的局域场强度几乎不受影响的解释。



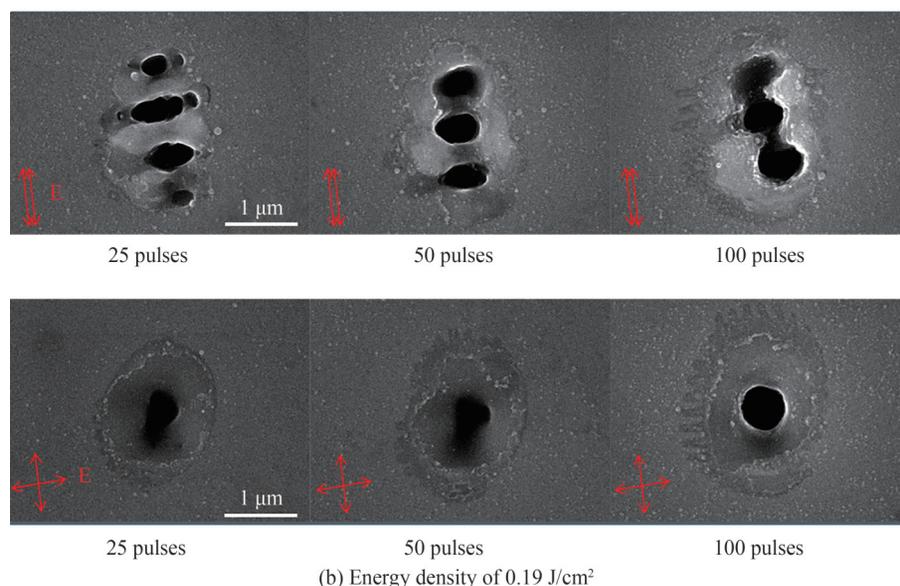


图5 不同能量密度与脉冲数诱导结构的扫描电镜图像

Fig. 5 SEM images of structures induced by different energy densities and pulse numbers

3 结论

本文采用FPDPS辐照硅表面,通过调控两束脉冲之间的偏振夹角和延迟时间,研究了LIPSS结构面积的变化及辐照时的电子激发过程。研究表明:LIPSS结构的面积随偏振夹角的增大而减小,是因为稳定局域场反复改变抑制了诱导结构边缘的烧蚀阈值降低,而辐照中心区域几乎不受影响。在实验上,通过对LIPSS结构面积进行表征和分析,对复合双脉冲辐照硅表面时的受激电子非线性电离动力学过程进行了研究,发现诱导结构面积变化与从电子电离到物质喷发的连续过程相对应。而局域场增强、高度局域电离和周期性结构三者形成的正反馈机制进一步解释了孵化效应的产生。实验中观察到的这种减小激光诱导结构面积但不影响中心区域电离强度的方法,也为突破衍射极限,实现激光超分辨加工提供了一条可行的途径。

参考文献

- [1] MÜLLER F A, KUNZ C, GRÄF S. Bio-inspired functional surfaces based on laser-induced periodic surface structures[J]. *Materials*, 2016, 9 (6): 476.
- [2] COSTACHE F, KOUTEVA-ARGUIROVA S, REIF J. Sub-damage-threshold femtosecond laser ablation from crystalline Si: surface nanostructures and phase transformation[J]. *Applied Physics A*, 2004, 79: 1429-1432.
- [3] BONSE J, WBRZEZINKA K, MEIXNER A J. Modifying single-crystalline silicon by femtosecond laser pulses: an analysis by micro Raman spectroscopy, scanning laser microscopy and atomic force microscopy [J]. *Applied Surface Science*, 2004, 221 (1-4): 215-230.
- [4] LIU Jukun, JIA Xin, WU Weishu, et al. Ultrafast imaging on the formation of periodic ripples on a Si surface with a prefabricated nanogroove induced by a single femtosecond laser pulse[J]. *Optics Express*, 2018, 26 (5): 6302-6315.
- [5] YANG Jianjun, ZHANG Decheng, WEI Jinye, et al. The effect of different pulse widths on lattice temperature variation of silicon under the action of a picosecond laser[J]. *Micromachines*, 2022, 13 (7): 1119.
- [6] BALDACCHINI T, CAREY J E, ZHOU Ming, et al. Superhydrophobic surfaces prepared by microstructuring of silicon using a femtosecond laser[J]. *Langmuir*, 2006, 22 (11): 4917-4919.
- [7] HALBWAX M, SARNET T, DELAPORTE P, et al. Micro and nano-structuration of silicon by femtosecond laser: Application to silicon photovoltaic cells fabrication[J]. *Thin Solid Films*, 2008, 516 (20): 6791-6795.
- [8] ZHANG Chengyun, YAO Jianwu, LIU Haiying, et al. Colorizing silicon surface with regular nanohole arrays induced by femtosecond laser pulses[J]. *Optics Letters*, 2012, 37 (6): 1106-1108.
- [9] CAO Kaiqiang, CHEN Long, WU Haochen, et al. Large-area commercial-grating-quality subwavelength periodic ripples on silicon efficiently fabricated by gentle ablation with femtosecond laser interference via two cylindrical lenses[J]. *Optics and Laser Technology*, 2020, 131: 106441.
- [10] ZHANG Yuchan, JIANG Qilin, LONG Mingquan, et al. Femtosecond laser-induced periodic structures: mechanisms,

- techniques, and applications[J]. *Opto-Electronic Science*, 2022, 1: 220005.
- [11] LIN Zhenyuan, JI Lingfei, HONG Minghui. Enhancement of femtosecond laser-induced surface ablation via temporal overlapping double-pulse irradiation[J]. *Photonics Research*, 2020, 8 (3): 271-278.
- [12] JALIL S A, YANG Jianjun, ELKABBASH M, et al. Maskless formation of uniform subwavelength periodic surface structures by double temporally-delayed femtosecond laser beams[J]. *Applied Surface Science*, 2019, 471: 516-520.
- [13] HÖHM S, ROSENFELD A, KRÜGER J, et al. Area dependence of femtosecond laser-induced periodic surface structures for varying band gap materials after double pulse excitation[J]. *Applied Surface Science*, 2013, 278: 7-12.
- [14] JIAO Lei, KONG Defu, ZHANG Xu, et al. Ripple period adjustment on SiC surface based on electron dynamics control and its polarization anisotropy[J]. *Applied Physics A*, 2021, 127: 1-9.
- [15] LIU Wei, JIANG Lan, HAN Weina, et al. Manipulation of LIPSS orientation on silicon surfaces using orthogonally polarized femtosecond laser double-pulse trains[J]. *Optics Express*, 2019, 27 (7): 9782-9793.
- [16] ZHAO Bo, ZHENG Xin, LEI Yuhao, et al. High-efficiency-and-quality nanostructuring of molybdenum surfaces by orthogonally polarized blue femtosecond lasers[J]. *Applied Surface Science*, 2022, 572: 151371.
- [17] YIN Weiyi, SONG Juan, REN Xiangyu, et al. Nonlinear ionization control by temporally shaped fs+ ps double-pulse sequence on ZnO[J]. *Chinese Optics Letters*, 2023, 21 (2): 021602.
- [18] SONG Juan, YE Junyi, LIN Xian, et al. Discussion of the possible formation mechanism of near-wavelength ripples on silicon induced by femtosecond laser[J]. *Applied Physics A*, 2015, 118: 1119-1125.
- [19] HAN Weina, JIANG Lan, LI Xiaowei, et al. Anisotropy modulations of femtosecond laser pulse induced periodic surface structures on silicon by adjusting double pulse delay[J]. *Optics Express*, 2014, 22 (13): 15820-15828.
- [20] ZHAO Xin, SHIN Y C. Ablation enhancement of silicon by ultrashort double-pulse laser ablation[J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 105 (11): 111907.
- [21] LIANG Feng, VALLÉE R, CHIN S L. Mechanism of nanograting formation on the surface of fused silica[J]. *Optics Express*, 2012, 20 (4): 4389-4396.
- [22] BHARDWAJ V R, SIMOVA E, RAJEEV P P, et al. Optically produced arrays of planar nanostructures inside fused silica[J]. *Physical Review Letters*, 2006, 96 (5): 057404.
- [23] LIANG Feng, SUN Quan, GINGRAS D, et al. The transition from smooth modification to nanograting in fused silica[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96 (10): 101903.
- [24] ZHANG Jingyu, DREVINSKAS R, BERESNA M, et al. Polarization sensitive anisotropic structuring of silicon by ultrashort light pulses[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107 (4): 041114.
- [25] RETHFELD B, SOKOLOWSKI-TINTEN K, LINDE D, et al. Ultrafast thermal melting of laser-excited solids by homogeneous nucleation[J]. *Physical Review B*, 2002, 65 (9): 092103.
- [26] RETHFELD B, IVANOV D S, GARCIA M E, et al. Modelling ultrafast laser ablation[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2017, 50 (19): 193001.
- [27] YAO Yunhua, HE Yilin, QI Dalong, et al. Single-shot real-time ultrafast imaging of femtosecond laser fabrication[J]. *ACS Photonics*, 2021, 8 (3): 738-744.
- [28] ROSENFELD A, LORENZ M, STOIAN R, et al. Ultrashort-laser-pulse damage threshold of transparent materials and the role of incubation[J]. *Applied Physics A*, 1999, 69: S373-S376.

Study on Polarization Dependence of Ultrafast Combination Pulse Ablation on Silicon Surface (Invited)

SHI Huiqiang¹, YAO Qian¹, YIN Weiyi¹, SU Zihuai¹, YU Jiang¹, SONG Juan²,
LIN Xian¹, DAI Ye¹

(1 *Department of Physics, Shanghai University, Shanghai 200444, China*)

(2 *School of Material Science and Engineering, Jiangsu University, Zhenjiang 212013, China*)

Abstract: Since the invention of the laser, a great deal of research has focused on the mechanisms of laser-silicon interactions. Although ultrafast laser processing of Laser Induced Periodic Surface Structures (LIPSS) structures on silicon surfaces has been carried out for a long time, there are still problems, such as low processing efficiency in the preparation of large-area structures. The use of double pulse sequences has therefore been tried to improve the quality and efficiency of the process and has proved to be an effective strategy. A new method was provided for enhanced energy deposition by irradiating a ZnO surface with a

Fs+Ps Double-Pulse Sequence (FPDPS) with a combined pulse width of 120 fs+2 ps and a sub-pulse energy ratio of 1:1. On this basis, we investigate the nonlinear ionization dynamics causing the evolution of periodic structures by studying the effect of polarization angle, delay time and number of pulses between the double pulses on the area of the periodic structure, using an ultrafast combination double pulse with a repetition frequency of 1 kHz as an excitation tool on a silicon wafer with a crystalline surface of $\langle 100 \rangle$. The experimental results show that under the combined pulse irradiation condition with a laser energy density of 0.23 J/cm² and pulse combination of 100 pulses, there is a “V” shaped variation pattern at all delays within ± 50 ps. The structure area induced by orthogonal polarization is the smallest, and the maximum area reduction rate is about 45% compared to that induced by other incident forms. This is due to the repeated modulation of the local field suppressing the reduction of the periodic structural edge ablation threshold. Specifically, the first pulse forms a LIPSS structure at the center and produces a local field modulated by polarization. When the two pulses are polarized in the same direction, subsequent pulses will gradually strengthen the initial local field, forming an elliptical distribution of stable local field strengths, which will effectively promote the growth of the LIPSS structure through a positive feedback mechanism. However, when the two pulses are polarized in different directions, the arrival of the second pulse will form a new local field and re-modulate the local field formed by the previous pulse, which will result in some energy dissipation and a reduction in the overall local field intensity, but the local field intensity at the center of the irradiation is theoretically almost unaffected, forming a circular local field intensity distribution when polarized orthogonally. Because the transient local field enhancement effect produced by laser irradiation promotes a lowering of the material ablation threshold, repeated changes in the local field not only inhibit the effect of the positive feedback mechanism, but also inhibit the effect of the local field enhancement in promoting a lowering of the ablation threshold. This effect is concentrated at the edges of the laser irradiated region, so we believe that the area of the LIPSS structure decreases with increasing polarization angle because the repeated changes in the local field suppress the reduction of the ablation threshold at the edge part of the LIPSS structure. At orthogonal polarization, the electron ionization to matter ejection can be characterized by observing the change in the area of the induced structure as the varied pulse delay times. According to the above theory, we designed experiments to test it. We used a 50 \times objective (NA=0.55) at a delay time of 2 ps. At an energy density of 0.19 J/cm², differences in parallel and orthogonally polarized LIPSS morphology are observed, which is consistent with our theoretical interpretation. This combination pulse modulation technique provides a way for studying the polarization dependence and electron ionization efficiency of ultrafast laser-induced periodic structures on semiconductor surfaces, and further improvements are expected to enable the rapid fabrication of super-diffractive limit structures.

Key words: Ultrafast optics; Ultrafast combination pulses; Polarization dependence; Local field modulation; Silicon; Ionization processes

OCIS Codes: 140.7090; 320.5540; 190.7110; 240.7040