

Роль эффекта накопления тепла в многоимпульсных режимах лазерной фемтосекундной структуризации кремния

© И.В. Гук, Г.Д. Шандыбина, Е.Б. Яковлев

Университет ИТМО,
197101 Санкт-Петербург, Россия
E-mail: corchand@gmail.com

(Получена 26 ноября 2014 г. Принята к печати 21 октября 2015 г.)

Представлены к обсуждению результаты количественной оценки эффекта накопления тепла при фемтосекундной лазерной структуризации поверхности кремния. В расчетах применен численно-аналитический метод, в рамках которого динамика электронных процессов и нагрев решетки моделируются численным методом, а стадия остывания описывается на основе аналитического решения. Исследовано влияние многоимпульсного облучения на изменение температуры поверхности: в электронной подсистеме — зависимости коэффициента поглощения от концентрации возбужденных носителей и зависимости поглощательной способности от температуры электронного газа; в решеточной подсистеме — изменение от импульса к импульсу поглощательной способности. Показано, что в низкочастотном режиме следования импульсов, характерном для фемтосекундной микроструктуризации кремния, эффект накопления тепла определяется не остаточной температурой поверхности к приходу следующего импульса, что соответствует традиционным представлениям, а ростом от импульса к импульсу максимального значения температуры, с которой начинается остывание. Накопление остаточной температуры поверхности может сказаться на процессе микроструктурирования при облучении вблизи порога испарения либо при увеличении частоты следования импульсов.

1. Введение

Использование ультракоротких импульсов лазерного излучения открыло новые возможности в целом ряде технологических приложений: в микро-, нанотехнологиях, в микро-, наномедицине, в микро-, нанобиологии [1]. В настоящее время актуальной является технология микро-, наноструктуризации поверхности металлов и полупроводников под действием фемто- и пикосекундных импульсов [2,3]. В зависимости от параметров лазерного излучения и свойств материала на поверхности могут образовываться различного вида структуры: периодическая рябь, упорядоченная зернистая структура, микроколонны различной толщины и высоты, окисные слои. В этих режимах традиционно используется технология многоимпульсной обработки при различных частотах следования импульсов [4–6]. Особенностью фемтосекундной многоимпульсной структуризации полупроводников является изменение оптических свойств приповерхностного слоя, как в течение импульса, так и после его окончания. Ранее исследовался эффект накопления тепла в режимах либо интенсивной фемтоабляции поверхности [7,8], либо при высоких частотах следования фемтосекундных импульсов (> 1 МГц) [9]. Таким образом, роль эффекта накопления тепла при низкочастотной фемтосекундной микроструктуризации поверхности полупроводника требует детального исследования.

В статье предлагаются к обсуждению результаты численно-аналитического анализа, связывающие эффект накопления тепла от импульса к импульсу с изменением оптических характеристик кремния во время действия фемтосекундного импульса и между импульсами.

2. Численно-аналитический метод оценки температуры поверхности

В расчетах применяется численно-аналитический метод, в рамках которого динамика электронных процессов и нагрев решетки моделируются численным методом, а стадия остывания описывается на основе аналитического решения, связывающего теплофизические характеристики материала и частоту следования импульсов. Этот метод позволяет значительно сократить время, требуемое для проведения расчетов. Численная модель одноимпульсного фемтосекундного возбуждения и нагревания кремния [10–12] позволяет количественно оценить пространственно-временное изменение концентрации возбужденных электронов, определяемое двухфотонным поглощением квантов света, диффузией носителей и внешней эмиссией, и температуру поверхности на основе двухтемпературной модели с изменяющейся теплоемкостью электронного газа. В расчетах используются исходные данные, соответствующие экспериментальным режимам фемтосекундной структуризации поверхности кремния: плотность энергии $Q = 0.4–0.8$ Дж/см², длительность импульса $\tau = 80$ фс, длина волны излучения $\lambda = 1250$ нм, частота следования импульсов $f = 1–1000$ Гц, число импульсов $N = 1–1200$ [13,14].

Стадия остывания рассматривается нами на основе аналитического решения уравнения теплопроводности с заданным начальным распределением температуры. В этом случае изменение температуры поверхности кремния относительно начальной к моменту прихода $(N + 1)$ импульса (остаточную температуру поверхно-

сти) можно оценить согласно [15]:

$$\Delta T(z=0, t=N/f) = (T_{\max} - T_{\text{init}}) \frac{1}{\alpha \sqrt{\pi a / f}} \sum_{i=1}^N \frac{1}{\sqrt{i}}, \quad (1)$$

где T_{\max} — температура, до которой нагревается поверхность кремния к моменту начала остывания, α — коэффициент поглощения кремния, a — температуропроводность кремния, T_{init} — начальная температура поверхности.

Из формулы (1) видно, что накопление тепла зависит от частоты следования и числа импульсов: чем выше частота и больше число импульсов, тем больше эффект накопления тепла. При сравнительно низких частотах (< 1 кГц) важную роль начинают играть коэффициент поглощения материала и значение максимальной температуры нагревания.

3. Коэффициент поглощения и максимальная температура нагрева кремния при воздействии одиночного фемтосекундного импульса

В течение действия лазерного импульса приповерхностный слой полупроводника металлизирован. Динамика коэффициента поглощения, представляющего собой сумму коэффициентов поглощения внутреннего фотоэффекта, внешнего фотоэффекта (эмиссионные явления) и поглощения на свободных электронах, отслеживает изменение концентрации неравновесных носителей. Как показывают численные расчеты, его значение в течение импульса превышает 10^5 см^{-1} . Оценить коэффициент поглощения после окончания импульса в момент достижения максимальной температуры нагрева решетки можно из численного расчета глубины δ , на которой максимальная температура решетки убывает в e раз. Из рис. 1 видно, что $\delta = 1.33 \cdot 10^{-5} \text{ см}$ и соответственно $\alpha = 1/\delta = 7.5 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$.

Таким образом, хотя на стадии остывания коэффициент поглощения снижается, его значение остается еще достаточно большим к моменту достижения максимальной температуры нагрева решетки, что снижает, согласно (1), остаточную температуру поверхности к приходу второго импульса и соответственно роль эффекта накопления в фемтосекундной структуризации кремния.

На значение остаточной температуры поверхности к приходу второго импульса влияет также значение максимальной температуры T_{\max} , до которой нагревается поверхность кремния к моменту начала остывания. В свою очередь T_{\max} определяется плотностью падающего светового потока и поглощательной способностью полупроводника. Используя в расчетах значение $Q = 0.4 \text{ Дж/см}^2$, оценим влияние изменяющейся в течение импульса поглощательной способности (ПС) на T_{\max} .

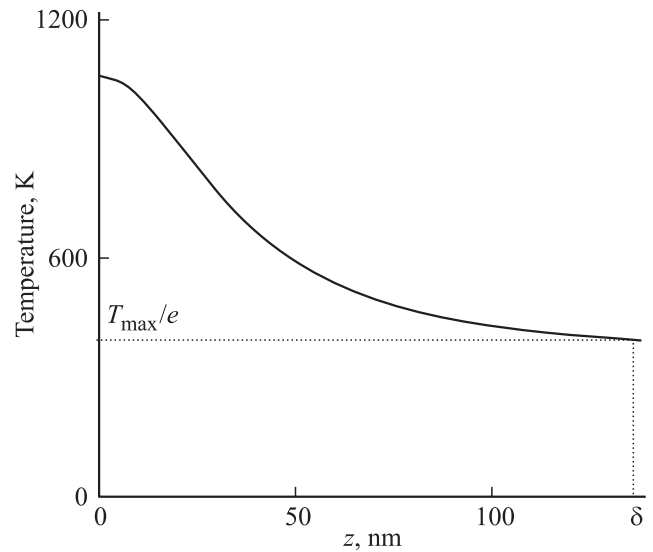


Рис. 1. Распределение температуры решетки по глубине z в момент времени, при котором температура решетки максимальна. $Q = 0.4 \text{ Дж/см}^2$, $A_0 = 0.2$.

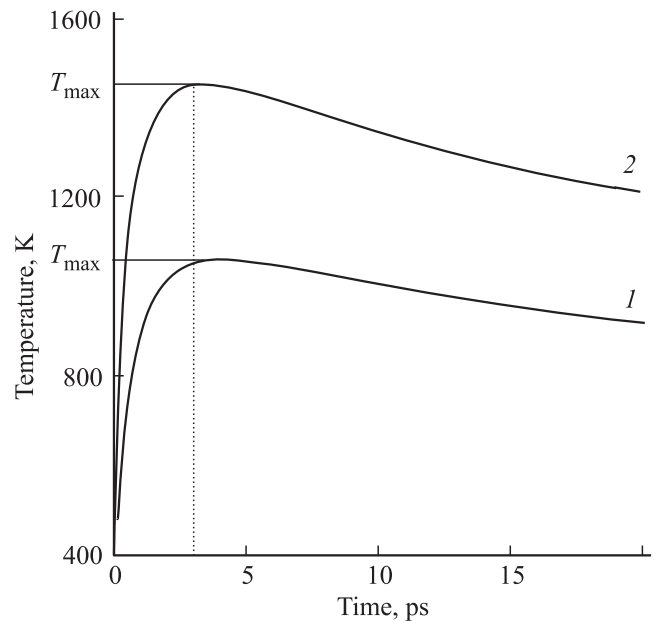


Рис. 2. Временная зависимость температуры поверхности кремния после окончания действия одиночного импульса: 1 — $A_0 = 0.2$; 2 — $A = A_0 + A(T_e)$.

Действительно, при ультракоротких воздействиях ПС зависит от частоты электрон-электронных столкновений и является функцией температуры электронного газа (T_e). Учитывая в приближении слабоаномального высокочастотного скин-эффекта зависимость ПС от температуры электронного газа [16] $A = A_0 + A(T_e)$, можно рассчитать временное распределение температуры поверхности кремния согласно двухтемпературной модели [10–12]. Из рис. 2 видно, что температура по-

верхности кремния достигает максимального значения спустя несколько пикосекунд после окончания импульса и возрастает в 1.3 раз при учете температурной зависимости ПС.

После окончания первого импульса остаточная температура поверхности перед приходом второго импульса составляет $\Delta T = 0.013$ К при $A = 0.2$ и $\Delta T = 0.015$ К при $A = A_0 + A(T_e)$.

4. Оценка накопления температуры поверхности от импульса к импульсу

При расчетах использовались исходные данные, соответствующие типичным экспериментальным режимам фемтосекундной структуризации кремния: $Q = 0.4$ Дж/см², $f = 10$ Гц, $N = 1200$.

Ранее мы учитывали изменение ПС в импульсе, но при облучении в режимах микроструктурирования поверхности ПС изменяется и от импульса к импульсу. Это обусловлено появлением и развитием периодического рельефа на поверхности полупроводника, причем от импульса к импульсу происходит как формирование рельефа по облучаемой площади [17], так и рост высоты рельефа. Кроме того, возрастает коэффициент преобразования падающего излучения в поверхностную электромагнитную волну, усиливая поляритонный механизм образования рельефа. Предлагаем в численно-аналитической модели учитывать изменение рельефа поверхности и возможность накапливать эти изменения от импульса к импульсу как появление дополнительного слагаемого в ПС (A_s):

$$A = A_0 + A(T_e) + A_s, \quad A_s = N\rho, \quad (2)$$

где ρ — феноменологический коэффициент.

Предлагаемый подход согласуется с результатами исследований фемтосекундных лазерных импульсных периодических поверхностных структур [18], где установлено появление значительного антиотражающего эффекта у облученного в режимах микроструктурирования кремния. Линейная зависимость дополнительной составляющей ПС согласуется с экспериментальными результатами работы [19], где установлен линейный рост высоты микрорельефа от числа импульсов. Значение феноменологического коэффициента может быть выбрано из экспериментальных условий режима микроструктурирования кремния, согласно которым при числе импульсов $N = 600$ – 1200 структуризация поверхности происходит в условиях плавления поверхности, но без интенсивного испарения и изменения типа периодического рельефа, и составляет $\rho = (1-5) \cdot 10^{-4}$.

На рис. 3 представлена рассчитанная зависимость остаточной температуры поверхности кремния от числа фемтосекундных импульсов. Видно, что учет изменения ПС между импульсами в результате модификации

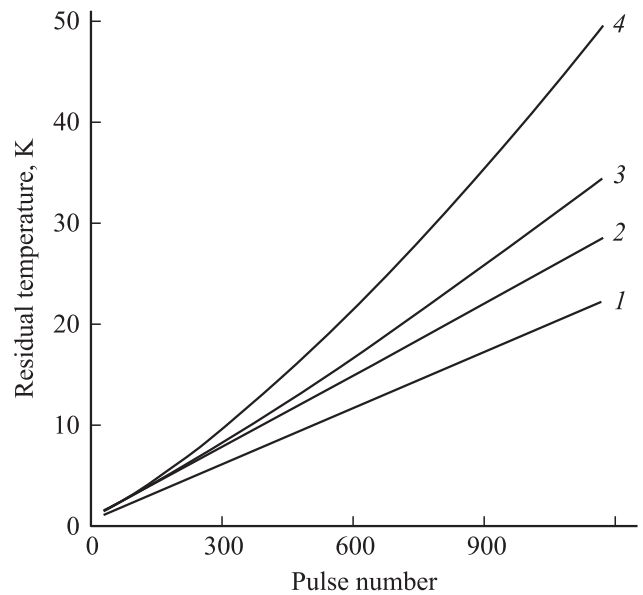


Рис. 3. Зависимость остаточной температуры поверхности кремния от числа импульсов: 1 — $A = 0.2$, 2 — $A = A_0 + A(T_e)$, 3, 4 — $A = A_0 + A(T_e) + N\rho$, $\rho = 10^{-4}$ (3) и $5 \cdot 10^{-4}$ (4).

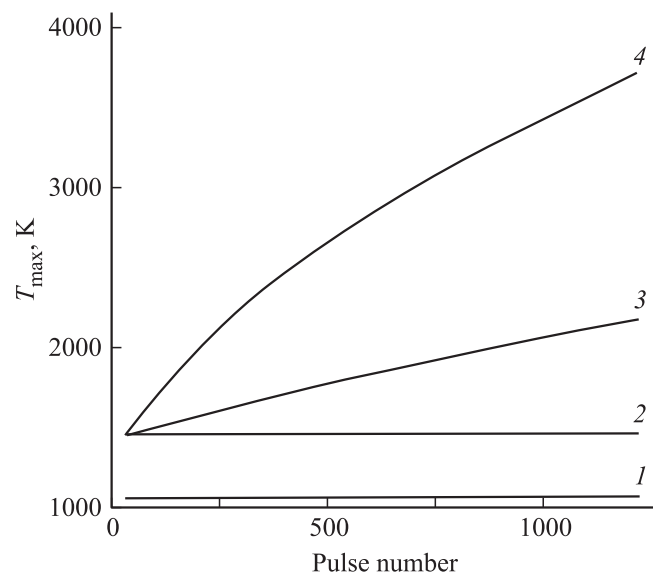


Рис. 4. Рост максимальной температуры нагрева поверхности кремния с увеличением числа импульсов: 1 — $A = 0.2$; 2 — $A = A_0 + A(T_e)$; 3, 4 — $A = A_0 + A(T_e) + N\rho$, $\rho = 10^{-4}$ (3), $5 \cdot 10^{-4}$ (4).

поверхности приводит к росту относительного нагрева за 1200 импульсов на величину не более 35–50 К, в зависимости от значения феноменологического коэффициента ρ (рис. 3, кривые 3, 4). Это сравнительно слабый накопительный эффект по остаточной температуре поверхности, что не соответствует наблюдаемому в эксперименте интенсивному развитию рельефа от числа импульсов.

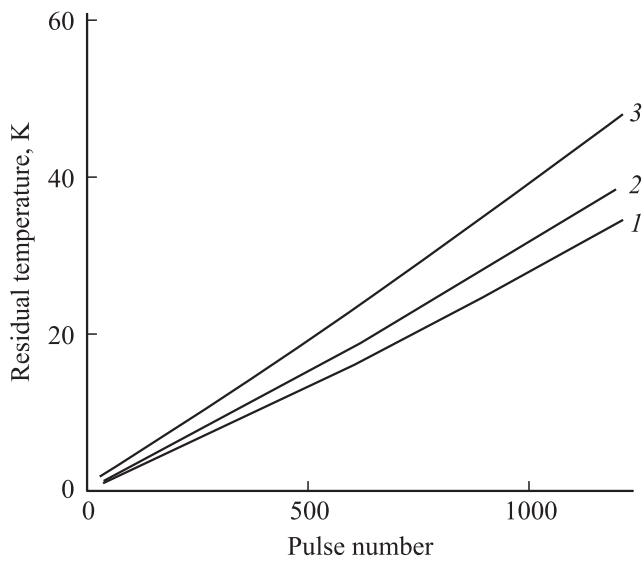


Рис. 5. Зависимость остаточной температуры поверхности кремния на частоте $f = 10$ Гц от числа импульсов при $A = A_0 + A(T_e) + N\rho$, $\rho = 10^{-4}$, $Q = 0.4$ (1), 0.5 (2), 1 Дж/см² (3).

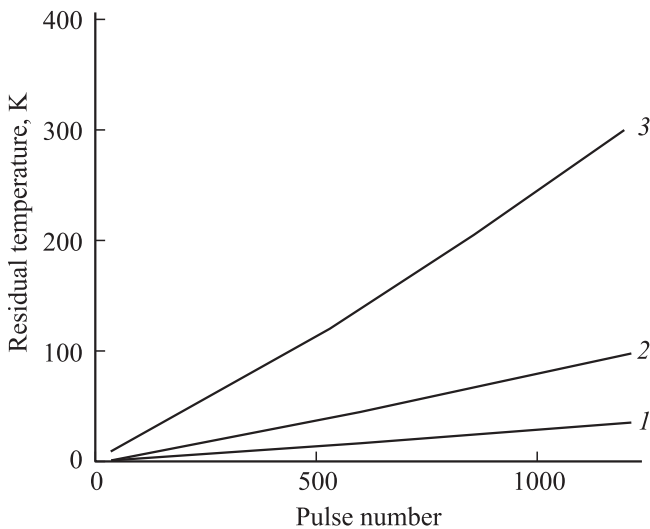


Рис. 6. Зависимость остаточной температуры поверхности кремния от числа импульсов при $A = A_0 + A(T_e) + N\rho$, $\rho = 10^{-4}$, $Q = 0.4$ Дж/см², $f = 10$ (1), 100 (2), 1000 Гц (3).

Однако совсем иначе проявляется эффект накопления по максимальному значению температуры. На рис. 4 представлен рост максимальной температуры нагрева поверхности кремния с увеличением числа импульсов для различных функциональных зависимостей ПС.

В случае постоянной ПС или ПС, изменяющейся благодаря процессам в электронной подсистеме фотовозбужденного полупроводника, T_{\max} остается постоянной с ростом числа импульсов и эффект накопления тепла описывается, согласно традиционным представлениям [18], остаточной температурой. Эффект накопления тепла при этом, как говорилось выше, крайне мал.

Если при расчетах учитывать межимпульсное изменение ПС, то значение максимальной температуры возрастает пропорционально числу импульсов. Сопоставляя полученные результаты с представлениями о „поляритонном“ микрорельефе, можно сказать, что выполненные оценки свидетельствуют о возможности развития гидродинамического или испарительного механизмов образования рельефа с увеличением числа импульсов, что соответствует экспериментальным данным. Кроме того, полученные результаты позволяют объяснить известный из эксперимента факт крайне сложного получения зародышей микрорельефа за первые 1–3 импульса.

5. Зависимость от плотности светового потока и частоты следования импульсов

Все предыдущие вычисления были выполнены для малой частоты следования импульсов, $f = 10$ Гц, и плотности светового потока ниже порога плавления кремния, $Q = 0.4$ Дж/см². На рис. 5, 6 представлены зависимости остаточной температуры ΔT от числа импульсов для различных значений плотности энергии лазерного излучения и частоты следования импульсов. Видно, что эффект накопления остаточной температуры поверхности может влиять на процесс модификации поверхности при частотах ~ 1000 Гц (см. рис. 6, кривая 3). Этот вывод косвенно подтверждается известными экспериментальными данными [21,22]. Действительно, формирование поверхностного рельефа на этих частотах происходит за значительно меньшее число импульсов $N = 50-200$.

6. Заключение

Представленные в статье результаты количественной оценки эффекта накопления тепла на поверхности кремния при многоимпульсном лазерном облучении в режимах фемтосекундного микроstructuring позволили определить вклад изменения оптических характеристик полупроводника в окончательный результат.

Коэффициент поглощения, близкий к значению в металлах к моменту начала остывания, приводит к снижению остаточной температуры поверхности (сотая доля градуса за импульс) и соответственно к слабому эффекту накопления. Увеличение ПС в течение импульса за счет роста температуры электронного газа вызывает увеличение максимальной температуры, до которой может нагреться решетка. Однако это значение не изменяется с ростом числа импульсов, поэтому эффект накопления определяется остаточной температурой поверхности и оказывается слабым, что плохо сопоставляется с экспериментально наблюдаемым развитием микрорельефа.

Изменение ПС между импульсами в режимах микроstructuring из-за роста в первую очередь высоты рельефа увеличивает остаточную температуру поверхности в 1.5–2 раза и может сказаться на процессе

микроструктурирования при облучении вблизи порога испарения либо при увеличении частоты следования импульсов. Определяющая роль в эффекте накопления при низкочастотной фемтосекундной структуризации кремния отводится накоплению максимальной температуры поверхности, обусловленному линейным изменением ПС от импульса к импульсу.

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ проект № 14-12-00351 и при государственной финансовой поддержке ведущих университетов Российской Федерации (субсидия 074-U01).

Список литературы

- [1] L. Cerami, E. Mazur, S. Nolte, C.B. Schaffer. *Ultrafast Nonlinear Optics* (Scottish Graduate Series, 2013) v. 13, p. 287.
- [2] B. Wu, M. Zhou, J. Li, X. Ye, G. Li, L. Cai. *Appl. Surf. Sci.*, **256**, 61 (2009).
- [3] M. Barberoglou, G.D. Tsibidis, D. Gray, E. Magoulakis, C. Fotakis, E. Stratakis, P.A. Loukakos. *Appl. Phys. A*, **113**, 273 (2013).
- [4] J. Bonse, S. Baudach, J. Krüger, W. Kautek, M. Lenzner. *Appl. Phys. A*, **74**, 19 (2002).
- [5] W. Han, L. Jiang, X. Li, P. Liu, L. Xu, Y.F. Lu. *Opt. Express*, **21** (13), 15 506 (2013).
- [6] F. Garrelie, J.P. Colombier, F. Pigeon, S. Tonchev, N. Faure, M. Bounhalli. *Opt. Express*, **19** (10), 9035 (2011).
- [7] P.T. Mannion, J. Magee, E. Coyne, G.M. O'Connor, T.J. Glynn. *Appl. Surf. Sci.*, **233**, 275 (2004).
- [8] A.Y. Vorobyev, C. Guo. *Appl. Phys. Lett.*, **86**, 011 916 (2005).
- [9] S.M. Eaton, H. Zhang, P.R. Herman, F. Yoshino, L. Shah, J. Bovatsek, A.Y. Arai. *Opt. Express*, **13** (12), 4708 (2005).
- [10] Г.А. Марциновский, Г.Д. Шандыбина, Ю.С. Деметьева, Р.В. Дюкин, С.В. Заботнов, Л.А. Головань, П.К. Кашкаров. *ФТП*, **43** (10), 1339 (2009).
- [11] Р.В. Дюкин, Г.А. Марциновский, Г.Д. Шандыбина, Е.Б. Яковлев, И.В. Гук. *Опт. журн.*, **78** (8), 118 (2011).
- [12] R.V. Dyukin, G.A. Martsinovskiy, O.N. Sergaeva, G.D. Shandybina, V.V. Svirina, E.B. Yakovlev. In: *Laser Pulses — Theory, Technology and Applications*, (Rijeka, InTech, 2012) v. 7, p. 197.
- [13] И.А. Остапенко, С.В. Заботнов, Г.Д. Шандыбина, Л.А. Головань, А.В. Червяков, Ю.В. Рябчиков, В.В. Яковлев, В.Ю. Тимошенко, П.К. Кашкаров. *Изв. РАН. Сер. физ.*, **70** (9), 1315 (2006).
- [14] Y. Han, S. Qu. *Chem. Phys. Lett.*, **495**, 241 (2010).
- [15] E.B. Yakovlev, O.N. Sergaeva, V.V. Svirina, M.V. Yarchuk. *Proc. SPIE*, **9065**, 906 509 (2013).
- [16] И.В. Гук, Г.А. Марциновский, Г.Д. Шандыбина, Е.Б. Яковлев. *ФТП*, **47**, 1642 (2013).
- [17] С.В. Заботнов, И.А. Остапенко, Л.А. Головань, В.Ю. Тимошенко, П.К. Кашкаров, Г.Д. Шандыбина. *Квантовая электроника*, **35** (10), 943 (2005).
- [18] A.Y. Vorobyev, C. Guo. *Opt. Express*, **19** (5), 1032 (2011).
- [19] Y. Yang, J. Yang, L. Xue, Y. Guo. *Appl. Phys. Lett.* **97**, 141 101 (2010).
- [20] А.А. Веденов, Г.Г. Гладуш. *Физические процессы при лазерной обработке материалов* (М., Энергоатомиздат, 1985).
- [21] O. Varlamova, M. Bounhallia, J. Reif. *Appl. Surf. Sci.*, **278**, 62 (2013).
- [22] Y. Ma, J. Si, X. Sun, T. Chen, X. Hou. *Appl. Surf. Sci.*, **313**, 905 (2014).

Редактор Л.В. Шаронова

The role of heat accumulation effect in the multipulse modes of femtosecond laser silicon microstructuring

I.V. Guk, G.D. Shandybina, E.B. Yakovlev

University ITMO,
197101 St. Petersburg, Russia

Abstract The results of the quantitative evaluation of the heat accumulation effect during femtosecond laser microstructuring of the silicon surface are presented to discussion. In the calculations the quantitative-analytical method is used, in which the dynamics of the electron processes and lattice heat are modelled by a quantitative method, and the cooling stage is described on the basis of an analytical solution. Influence to the change of the surface temperature during multipulse irradiation is studied: in the electron subsystem — the dependence of the absorption coefficient on the excited carrier concentration and the dependence of the absorbance on the electron gas temperature; in the lattice subsystem — the change of the absorbance on pulse to pulse. It is shown, that in the low-frequency regime of pulse repetition, which is characteristic to the femtosecond microstructuring of silicon, the effect of heat accumulation is determined not by the residual temperature of the surface when the second pulse arrives, but by growth of the maximum value of the temperature from pulse to pulse, from which the cooling begins. The accumulation of the residual temperature of the surface can affect the process of the microstructuring during irradiation near the evaporation threshold, either by the increasing of the pulse repetition rate.