

- [2] D r o u h i n H.J., H e r m a n n C., L a m-  
p e l G. - Festkorperprobleme, 1985, v. 25, p.255.
- [3] H o u d r é R., H e r m a n n C., L a m-  
p e l G., F r i j l i n k P.M. - Surface Science,  
1986, v. 168, p. 538.
- [4] S p i c e r W.E., L i n d a u I., S k e a t c h P.,  
S u C.Y. - Chys P.; Phys. Rev. Lett., 1980, v. 44,  
p. 420.
- [5] M a k r a m-E b e i d S., M a r t i n G.M.  
Deep Centers in Semiconductors, Gordon Breach,  
New York, 1986, p. 399.
- [6] V o n B a r d e l e b e n H.J., B o u r-  
g o i n J.C. - J. Appl. Phys., 1985, v. 58, p. 1041.
- [7] B a g r a e v N.T., M a s h k o v V.A. -  
Materials Science Forum, 1986, v. 10-12, p. 435.

Поступило в Редакцию  
11 ноября 1987 г.

Письма в ЖТФ, том 14, вып. 4

26 февраля 1988 г.

## НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЙ МЕТОД ИССЛЕДОВАНИЯ ШЕРОХОВАТОСТИ И СКАНИРУЮЩАЯ ТУННЕЛЬНАЯ МИКРОСКОПИЯ ПОВЕРХНОСТИ

О.А. А к ц и п е т р о в, С.И. В а с и л ь е в,  
В.И. П а н о в

В работе проведена калибровка чувствительности нелинейно-оптического метода контроля шероховатости поверхности, предложенного в работах [1, 2] прямыми топографическими исследованиями с помощью сканирующего туннельного микроскопа (СТМ) высокого разрешения [3].

1. Нелинейно-оптический метод контроля шероховатости поверхности металлов и полупроводников основан на изучении отличительных особенностей поляризации и диаграммы направленности излучения отраженной второй гармоники (ВГ) при ее генерации на гладкой и шероховатой поверхности твердого тела.

На гладкой поверхности изотропных сред процесс генерации отраженной ВГ подчиняется поляризационным правилам отбора, называемым  $s,s$ - и  $p,s$ - запретами [2]. Согласно этим правилам отбора,  $s$  - поляризованная вторая гармоника отсутствует и для  $s$ - и для  $p$  - поляризованного излучения накачки. Диаграмма направленности излучения отраженной ВГ для разрешенной  $p,p$ -геометрии на гладкой поверхности имеет зеркальный характер [4].

На шероховатой поверхности уже нельзя говорить о  $s,s$ - или  $p,s$ - геометрии нелинейного взаимодействия в чистом виде.

Поэтому на такой поверхности генерируется отраженная ВГ с запрещенной  $s$  - поляризацией, интенсивность которой  $I_{2\omega}^{ps}$  (или  $I_{2\omega}^{sps}$ ) может служить мерой шероховатости. Диаграмма направленности излучения запрещенной ВГ диффузна [5]. Высокая чувствительность нарушения поляризационных запретов к шероховатости была продемонстрирована в работе [2], в которой запрещенная ВГ уверенно регистрировалась при суммарном объеме металла, заключенного в шероховатости, меньшем одного монослоя. Прямые микроскопические исследования столь малой неоднородности поверхности монокристаллических образцов традиционными методами провести невозможно. Только туннельная микроскопия позволяет исследовать топографию поверхности достаточно толстых слоев металла с необходимым в данном случае разрешением.

2. Для определения предельной чувствительности нелинейно-оптического метода исследования шероховатости были приготовлены поликристаллические образцы золота и серебра с максимально достижимой в наших условиях гладкостью поверхности. Пленки золота с толщиной  $\sim 600 \text{ \AA}$  наносились вакуумным термическим напылением на специальную слоистую структуру, представляющую собой химически полированную кварцевую пластину с последовательно напыленными слоями хрома и палладия с толщинами  $\sim 700 \text{ \AA}$  каждый.

Серебряные поликристаллические пленки готовились термическим напылением серебра в высоком вакууме (остаточное давление  $< 10^{-9}$  торр) на поверхность золотой пленки, охлажденной до температуры  $T \sim 77 \text{ K}$ . Перед нелинейно-оптическими измерениями образцы серебряных пленок отжигались в высоком вакууме при комнатной температуре.

Поверхность серебряного электрода, на которой исследовалась генерация ВГ при нанесении шероховатости с эффективным объемом металла в несколько монослоев, приготавливалась путем механической полировки поликристаллического серебра с помощью окиси алюминия с размером зерен  $0,05 \text{ мкм}$ . Для прецизионного нанесения шероховатости проводилось анодное травление поверхности в электрохимической ячейке с водным раствором хлористого калия при плотности заряда  $q \sim 2-3 \text{ мКл/см}^2$ , что соответствует  $s$ -схему нанесенной шероховатости  $\sim 5-8$  монослоев серебра.

3. Нелинейно-оптические исследования шероховатости проводились при комнатной температуре и атмосферных условиях по методике, описанной в работе [2]. Измерялось отношение интенсивности запрещенной  $p, s$  - гармоники к интенсивности разрешенной  $p, p$  - гармоники  $\sigma = I_{2\omega}^{p,s} / I_{2\omega}^{p,p}$ . Значения нелинейно-оптического параметра шероховатости  $\sigma$ , полученные для различных типов шероховатости, сведены в таблицу.

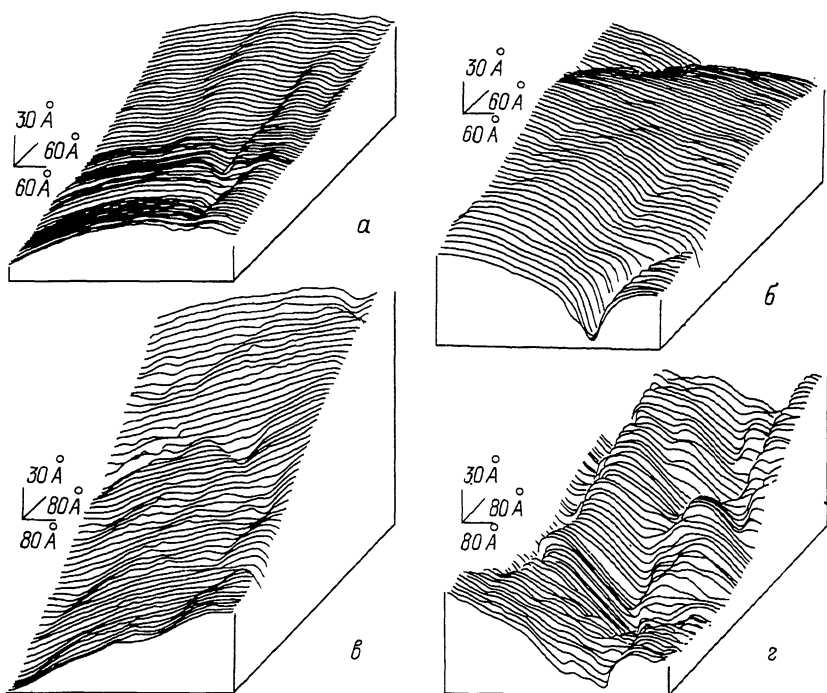
Геометрические параметры шероховатости измерялись с помощью СТМ, имеющего разрешение по нормали  $\delta z \approx 0,1 \text{ \AA}$  и в плоскости поверхности  $\delta l \sim 2 \text{ \AA}$  [3]. В таблице приведены полученные значения средней высоты неоднородности (либо глубины впадин)  $\Delta z$  и продольной корреляционной длины  $\Delta l$ .

Тип поверхности	$\sigma$	Параметры неоднородности	
		$\Delta z$ (Å)	$\Delta l$ (Å)
Напыленная пленка золота	$(5 \pm 2) \cdot 10^{-3}$	$\approx 10$	100 500
Напыленная пленка серебра	$(1.7 \pm 0.3) \cdot 10^{-2}$	$\approx 50$	500
Полированный серебряный электрод	$(1 \pm 0.3) \cdot 10^{-2}$	20-30	200
Серебряный электрод после анодного травления	$(1 \pm 0.2) \cdot 10^{-1}$	50-100	100 500

4: Наиболее гладкую поверхность из исследованных нами образцов имеет пленка золота. Характерный вид поверхности такой пленки с плавной волнообразной шероховатостью представлен на рис. 1, а. Средняя высота неоднородности составляет  $\Delta z \approx 10$  Å. Корреляционная длина неоднородности сильно различается в двух перпендикулярных направлениях в плоскости пленки  $\Delta l_1 \sim 100$  Å,  $\Delta l_2 \sim 500$  Å. Нелинейно-оптический параметр для поверхности с такой шероховатостью имеет величину  $\sigma \sim (5 \pm 2) \cdot 10^{-3}$ . Малое значение  $\sigma$  в данном случае определяется не столько малой величиной  $\Delta z$ , сколько связано с соотношением  $\Delta l_{1,2} \gg \Delta z$ . На такой плавной шероховатости не происходит возбуждение локализованных поверхностных плазмонов (ПП) и мал коэффициент поверхностного усиления для отраженной ВГ, который определяется в этом случае возбуждением поверхностных плазмон-поляритонов. Поскольку запрещенная  $\rho, s$ -гармоника непосредственно связана с поверхностным усилением [5], ее интенсивность для "гладкой" пленки золота мала  $I_{\rho, s} \ll I_{2\omega}$ .

Поверхность отожженных пленок серебра, напыленных на холодную подложку, имеет другой тип шероховатости, представляющий собой сравнительно большие гладкие участки, разделенные узкими щелями - границами микрокристаллитов - рис. 1, б. Глубина провалов для такой пленки  $\Delta z \approx 50$  Å, корреляционная длина  $\Delta l \sim 500$  Å. Хотя и в этом случае выполняется соотношение  $\Delta l \gg \Delta z$ , параметр  $\sigma \sim (1.7 \pm 0.3) \cdot 10^{-2}$  существенно больше. Увеличение  $\sigma$ , по-видимому, вызвано остаточным поверхностным усилением, связанным с локализацией плазмонов на межкристаллитных провалах (с) - эффектом щелей [6].

Поверхность серебряного электрода после механической полировки имеет существенно меньшую корреляционную длину шероховатости  $\Delta l \sim 200$  Å при средней высоте неоднородности  $\Delta z \sim 20-30$  Å (рис. 1, в). Для такой поверхности соотношение между  $\Delta l$  и  $\Delta z$



Топография поверхности: напыленной пленки золота (а); отожженной пленки серебра, напыленной на холодную золотую подложку (б); полированного серебряного электрода до анодного травления (в), после анодного травления зарядом, эквивалентным 5–8 моноатомным слоям серебра (г).

становится менее жестким, что приводит к более эффективному, чем в случае пленки золота, возбуждению локализованных ПП. Связанное с этим поверхностное усиление определяет величину  $\sigma \sim (1 \pm 0.3) \cdot 10^{-2}$ . После электрохимического травления с плотностью заряда  $q \sim 2-3$  мКл/см<sup>2</sup> шероховатость поверхности принимает гранулярный характер (рис. 1, г). Возбуждаемые в гранулах излучением накачки локализованные ПП приводят к интенсивной генерации гигантской ВГ и, следовательно, к большим значениям нелинейно-оптического параметра  $\sigma \sim (1 \pm 0.2) \cdot 10^{-1}$ .

Таким образом, прямые микроскопические исследования, выполненные с помощью СТМ высокого разрешения, показывают высокую предельную чувствительность нелинейно-оптического метода дистанционного контроля, позволяющего регистрировать шероховатость с размерами  $\leq 10$  Å.

В заключение авторы благодарят Л.В. Келдыша за организацию работы и полезные обсуждения, Е.Д. Мишину и В.Б. Леонова за помощь в проведении измерений.

- [1] А к ц и п е т р о в О.А., Б а р а н о в а И.М., И л ь -  
и н с к и й Ю.А. - ЖЭТФ, 1986, т. 91, в. 1 (7), с. 287.
- [2] А к ц и п е т р о в О.А., К у л ю к Л.Л., П е т у х о в А.В.,  
С т р у м б а н Э.Е., Ц ы ц а н у В.И. - Письма в ЖТФ,  
1986, т. 12, в. 22, с. 1345.
- [3] В а с и л ь е в С.И., Л е о н о в В.Б., П а н о в В.И. -  
Письма в ЖТФ, 1987, т. 13, в. 15, с. 937.
- [4] Б л о м б е р г е н Н. Нелинейная оптика, М.: Наука, 1964.
- [5] А к ц и п е т р о в О.А., П е т у х о в А.В., П е т у х о -  
в а А.Л. - Оптика и спектроскопия, 1987, т. 63, в. 2, с. 437.
- [6] А к ц и п е т р о в О.А. и др. - Письма в ЖЭТФ, 1986,  
т. 44, в. 8, с. 371.

Московский государственный  
университет им. М.В. Ломоносова

Поступило в Редакцию  
19 ноября 1987 г.