

ЛАЗЕРНАЯ ФИЗИКА И ТЕХНИКА

УДК 621.9.048.7(043)

ДИНАМИКА ПИКОСЕКУНДНОЙ ИМПУЛЬСНОЙ ЛАЗЕРНОЙ АБЛЯЦИИ КРЕМНИЕВЫХ МИШЕНЕЙ

© 2011 г. А. И. Алехин*; П. А. Перминов**; С. В. Заботнов*, канд. физ.-мат. наук;
Л. А. Головань*, доктор физ.-мат. наук; П. К. Кашкаров**, доктор физ.-мат. наук

* Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва

** Российский научный центр “Курчатовский институт”, Москва

E-mail: a.i.alekhin@gmail.com

Исследована динамика формирования наночастиц во время пикосекундной импульсной лазерной абляции образцов кристаллического и пористого кремния с помощью упругого рассеяния света. Представлены экспериментальные зависимости сигнала рассеяния на продуктах абляции от расстояния между зондирующим излучением и поверхностью мишени. Обсуждаются различия этих зависимостей для пластин кристаллического и пористого кремния. Было обнаружено, что кинетика рассеяния зондирующего излучения на продуктах абляции имеет два характерных пика на временах порядка нескольких микросекунд и нескольких десятков микросекунд соответственно.

Ключевые слова: наноструктурирование, лазерная абляция, упругое рассеяние света.

Коды OCIS: 140.3390, 290.5820, 160.6000.

Поступила в редакцию 09.11.2010.

Лазерная абляция представляет собой универсальный способ обработки твердотельных поверхностей и получения наночастиц, образующихся в результате агломерации кластеров, вылетевших с поверхности мишени. К числу достоинств данного метода относится то, что он не требует использования катализаторов и других химических веществ и позволяет существенно расширить круг материалов, используемых для формирования наноструктур. Несмотря на большое количество работ, посвященных лазерной абляции, механизмы процессов остаются во многом неизученными [1]. Поэтому большое значение имеют исследования динамики процессов, происходящих во время и после взаимодействия короткого лазерного импульса с веществом. Понимание физики явлений, происходящих в процессе разлета продуктов абляции, позволит сделать данный метод более контролируемым и повысить качество формируемых наноструктур.

Динамика лазерного факела обычно исследуется методами теневых проекций, эмиссионной спектроскопии и времяпролетных измере-

ний для ионов [2–8]. Эти методы исследования обладают рядом ограничений, которые не позволяют считать их универсальными для изучения динамики формирования наночастиц. Метод теневых проекций дает информацию только о распределении плотности вещества в облаке продуктов абляции и о скорости разлета продуктов абляции, но не дает никакой информации о самих наночастицах. Эмиссионная спектроскопия позволяет проследить момент, когда начинается процесс агломерации наночастиц: линейчатый спектр переходит в сплошной спектр абсолютно черного тела [4], но не позволяет проследить изменение размеров образующихся кластеров. Наиболее перспективным методом исследования динамики формирования наночастиц представляется упругое рассеяние света. Результаты, полученные в настоящей работе методом упругого рассеяния света, подтверждаются остальными вышеизложенными методами. Помимо этого, стоит отметить, что анализ угловой зависимости упругого рассеяния света на продуктах абляции в различные моменты времени позволяет просле-

дить изменение размеров образующихся наночастиц.

Большой интерес представляет формирование наночастиц кремния при лазерной абляции [5–9], что обусловлено значением данного материала для электроники. Выполненные ранее исследования свидетельствуют о возникновении в результате абляции наночастиц кремния размером от 2 до 100 нм, которые в ряде случаев демонстрируют видимую фотолюминесценцию [5, 9].

В настоящей работе представлены результаты исследований динамики формирования наночастиц во время пикосекундной импульсной лазерной абляции образцов кристаллического (с-Si) и пористого (por-Si) кремния с помощью измерения сигнала упругого рассеяния света на продуктах абляции. Использование por-Si позволило нам сравнить влияние условий поглощения излучения мишенью (por-Si обладает существенно меньшей теплопроводностью, чем с-Si), тогда как взаимодействие продуктов абляции с буферным газом для обоих материалов одинаково. Слои por-Si были получены путем электрохимического травления пластины с-Si с удельным сопротивлением 10–20 мОм см и ориентацией поверхности (100) в спиртовом растворе плавиковой кислоты $\text{HF}(48\%):\text{C}_2\text{H}_5\text{OH} = 1:1$ при плотности тока травления 50 mA/cm^2 в течение 20 мин. В результате этого процесса в приповерхностном слое толщиной более 20 мкм формируется сеть пор диаметром порядка 10 нм, разделенных на-

нокристаллами кремния. Образцы por-Si от подложки не отделялись. Абляция производилась с помощью пикосекундного лазера Nd:YAG (1064 нм, 32 пс, 0–15 Дж/см²). Источником зондирующего излучения был непрерывный лазер LCS-DTL-364 на кристалле Nd:YAG с длиной волны 473 нм. С помощью системы линз рассеянное излучение фокусировалось на входной щели монохроматора. Затем сигнал с фотоэлектронного умножителя, закрепленного на выходной щели монохроматора, через усилитель подавался на осциллограф. Все эксперименты проводились на воздухе при комнатной температуре и атмосферном давлении.

Кинетика упругого рассеяния света представлена на рис. 1. Врезка к рис. 1 позволяет сравнить продолжительность свечения плазмы и сигнала рассеяния света: сигнал упругого рассеяния света на частицах, вылетевших с поверхности образца, появляется в течение нескольких сотен наносекунд после начала действия лазерного импульса, когда свечение атомов и ионов в плазме факела погасло. На временных зависимостях упругого рассеяния света на продуктах абляции образцов с-Si (рис. 1а) и por-Si (рис. 1б) видны два пика. Данный эффект разделения лазерного факела был зарегистрирован иными методами (например, ионного зонда) и объясняется влиянием буферного газа. “Быстрый” компонент связан с более быстрыми частицами, которые практически не испытали столкновений в процессе своего разлета, тогда как “медленный” ком-

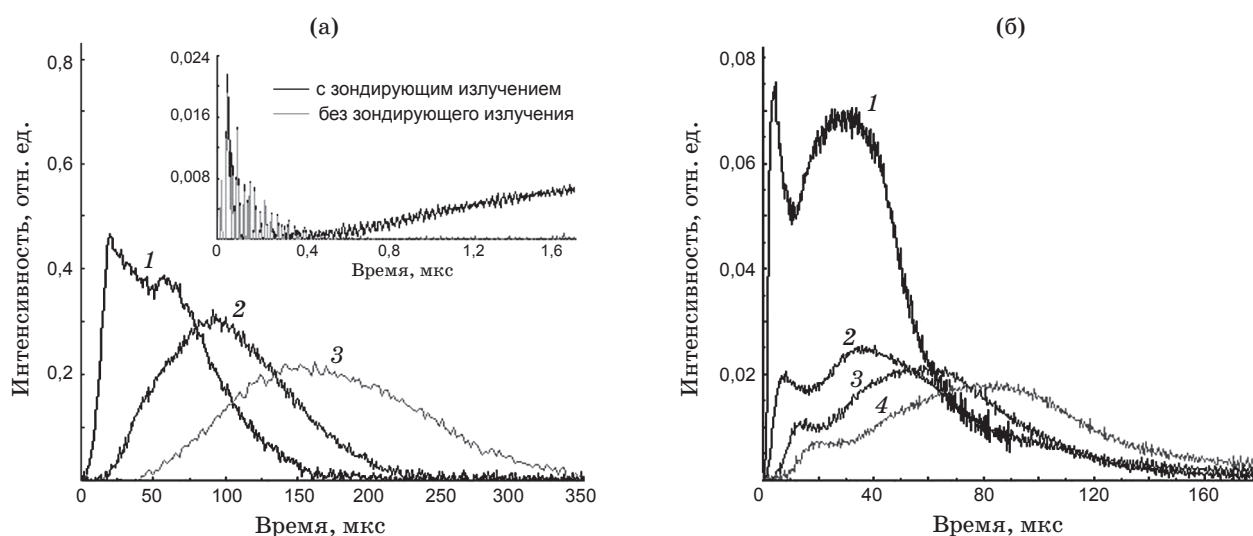


Рис. 1. Кинетика рассеяния на продуктах абляции (1064 нм, 7,5 Дж/см², 32 пс) для различных расстояний между зондирующим излучением и поверхностью образца. а – с-Si, б – por-Si. 1 – 0,13, 2 – 0,25, 3 – 0,38, 4 – 0,51 мм. Вставка: кинетика свечения факела и упругого рассеяния света.

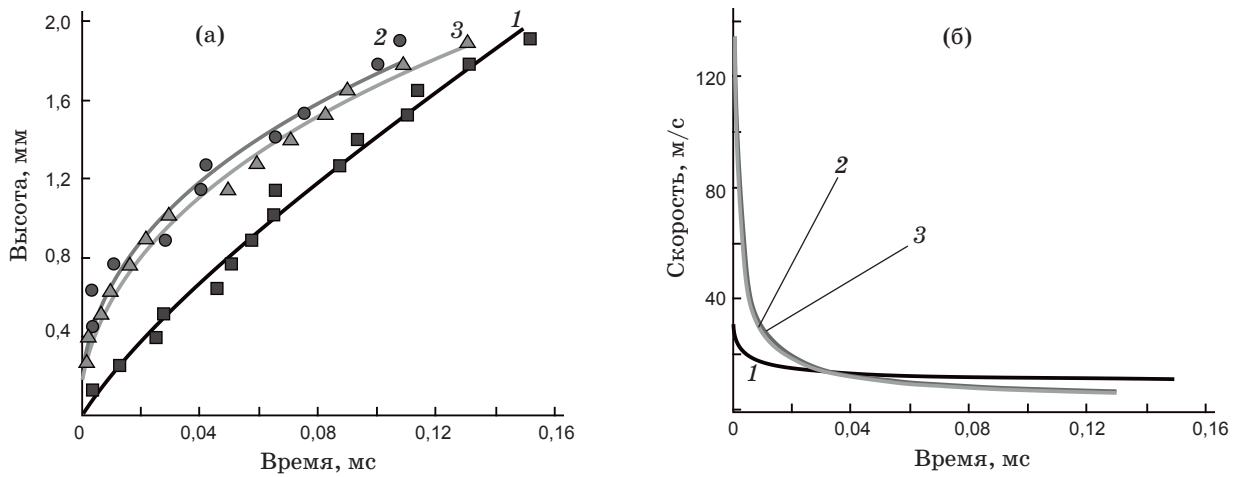


Рис. 2. Зависимости времени появления сигнала рассеяния от высоты зондирующего излучения (а) и временные зависимости скорости расширения облака продуктов абляции (б). 1 – c-Si 7,5 Дж см⁻², 2 – c-Si 15 Дж см⁻², 3 – por-Si 7,5 Дж см⁻².

понт обусловлен распространением частиц, сталкивающихся с атомами буферного газа [7]. При увеличении высоты зондирующего излучения сигнал рассеянного света падает, вклад в него “быстрого” компонента уменьшается, а расстояние между максимумами двух компонентов возрастает. Отметим, что для высоты 0,13 мм над поверхностью сигнал рассеяния выше для por-Si, что обусловлено как большим числом аблированных из por-Si частиц, так и их большей скоростью. С этим же связано и сохранение для por-Si разделения на быстрый и медленный компонент для всех исследованных высот, тогда как для c-Si скорость атомов недостаточно велика, чтобы пройти расстояния свыше 0,25 мм без столкновений. Поскольку наночастицы в процессе лазерной абляции образуются при столкновении испаренных атомов, формирование наночастиц соответствует “медленному” компоненту и происходит на временах от 40 до 300 мкс. Данные времена намного превосходят характерные времена существования возбужденных атомов и ионов [2]; это является указанием на то, что наблюдаемое рассеяние обусловлено наночастицами кремния.

Увеличивая высоту зондирующего излучения над поверхностью мишени, мы смогли проследить за расширением облака продуктов абляции (рис. 2а). Интерполяция экспериментальных данных проводилась с помощью функции вида

$$h(t) = at^b, \quad (1)$$

где a и b – параметры интерполяции. Для плотности энергии лазерного импульса $W = 7,5$ Дж см⁻² величины b составляют 0,82 и 0,44 для образцов c-Si и por-Si соответственно, для мишени c-Si и $W = 15$ Дж см⁻² $b = 0,42$. В последних двух случаях параметры b близки к модели точечного взрыва, для которой радиус R сферической взрывной волны пропорционален $t^{2/5}$ [10]. Производная функции (1) описывает временную зависимость скорости расширения облака продуктов абляции (рис. 2б)

$$v(t) = abt^{b-1}. \quad (2)$$

В момент появления сигнала рассеяния для образцов c-Si при плотности энергии лазерного импульса 15 Дж см⁻² и por-Si при 7,5 Дж см⁻² скорость расширения облака продуктов абляции достигала 130 м/с, а для образцов c-Si при 7,5 Дж см⁻² – 30 м/с. Напомним, что характерные скорости атомов и ионов, достигаемые при разлете лазерного факела, превышают 1000 м/с, однако для наночастиц они на порядок меньше [2].

Таким образом, исследование упругого рассеяния лазерного излучения на продуктах абляции c-Si и por-Si позволяет получить качественную и количественную информацию о динамике формирования наночастиц, возникающих при взаимодействии короткого лазерного импульса с образцом.

Работа была поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проекты № 08-09-90024 и № 09-02-00888). Измерения были выполнены на оборудовании Центра коллективного пользования физического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова.

ЛИТЕРАТУРА

1. Анисимов С.И., Лукьянчук Б.С. Избранные задачи лазерной абляции // УФН. 2002. Т. 172. № 3. С. 301–333.
2. Noël S., Hermann J., Itina T. Investigation of nanoparticle generation during femtosecond laser ablation of metals // Appl. Surf. Sci. 2007. V. 253. P. 6310–6315.
3. Henley S.J., Carey J.D., Silva S.R.P., Fuge G.M., Ashfold M.N.R., Anglos D. Dynamics of confined plumes during short and ultrashort pulsed laser ablation of graphite // Phys. Rev. B. 2005. V. 72. 205413.
4. Lenner M., Kaplan A., Huchon Ch., Palmer R.E. Ultrafast laser ablation of graphite // Phys. Rev. B. 2009. V. 79. 184105.
5. Geohegan D.B., Poretzky A. A., Duscher G., Pennycook S.J. Time-resolved imaging of gas phase nanoparticle synthesis by laser ablation // Appl. Phys. Lett. 1998. V. 72. P. 2987–2989.
6. Amoroso S., Ausanio G., Bruzzese R., Gragnaniello L., Lanotte L., Vitiello M., Wang X. Characterization of laser ablation of solid targets with near-infrared laser pulses of 100 fs and 1 ps duration // Appl. Surf. Sci. 2006. V. 252. P. 4863–4870.
7. Wood R.F., Leboeuf J.N., Geohegan D.B., Poretzky A.A., Chen K.R. Dynamics of plume propagation and splitting during pulsed-laser ablation of Si in He and Ar // Phys. Rev. B. 1998. V. 58. P. 1533–1543.
8. Conde J.C., Lusquinos F., Gonzalez P., Serra J., Leon B., Cultrera L., Guido D., Perrone A. Laser ablation of silicon and copper targets. Experimental and finite elements studies // Appl. Phys. A. 2004. V. 79. P. 1105–1110.
9. Заботнов С.В., Головань Л.А., Остапенко И.А., Рябчиков Ю.В., Червяков А.В., Тимошенко В.Ю., Кашкаров П.К., Яковлев В.В. Фемтосекундное наноструктурирование кремниевых поверхностей // Письма в ЖЭТФ. 2006. Т. 83. С. 69–71.
10. Седов Л.И. Методы подобия и размерности в механике. М.: Наука, 1977. 440 с.