

Нелинейный режим возбуждения поверхностной электромагнитной волны на поверхности кремния интенсивным фемтосекундным лазерным импульсом

А. А. Ионин, С. И. Кудряшов¹⁾, Л. В. Селезнев, Д. В. Сеницын, В. И. Емельянов⁺

Физический институт им. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

⁺Физический факультет МГУ им. Ломоносова, 119899 Москва, Россия

Поступила в редакцию 27 сентября 2012 г.

После переработки 27 ноября 2012 г.

Поверхностная электромагнитная волна возбуждена на атомно-гладкой поверхности кремния интенсивным инфракрасным (ИК) фемтосекундным лазерным импульсом в результате его самодифракции на микромасштабной короткоживущей оптической неоднородности области возбуждения, а не на шероховатости ее поверхностного рельефа. Визуализация данной волны в виде картины ее интерференции с тем же падающим ИК ультракоротким импульсом, соответствующей мгновенной поверхностной решетке диэлектрической проницаемости (отражения), а также результирующей решетки поверхностного рельефа осуществлена с помощью дальнепольной оптической микроскопии отражения с временным разрешением.

DOI: 10.7868/S0370274X13030016

1. Возбуждение поверхностных электромагнитных волн (ПЭВ, или поверхностных плазмон-поляритонов) с частотами оптического диапазона на поверхностях раздела проводящей и диэлектрической сред при падении низкоинтенсивной объемной электромагнитной волны на поверхность раздела с естественной субмикронной шероховатостью рельефа, обеспечивающей выполнение условия фазового синхронизма, обычно реализуется с низкой эффективностью [1]. Более высокая (вплоть до полной) степень перекачки объемной в поверхностную волну реализуется на поверхностях с искусственно организованной субмикронной шероховатостью рельефа, например в результате резонансного возбуждения поверхностных дифракционных решеток [1, 2], когда волновой вектор решетки компенсирует значительную разность волновых векторов падающей объемной и возбуждаемой поверхностной электромагнитных волн. Соответственно возбуждение ПЭВ представляется невозможным при падении низкоинтенсивных световых импульсов на идеально плоские (например, атомно-гладкие) поверхности. Вместе с тем известно, что интенсивные ультракороткие (фемтосекундные) световые импульсы (УКИ) могут без разрушения материала существенно изменять его оптические постоянные (как диэлектрика, так

и металла) в микромасштабной локальной области лазерного воздействия [3–5], т.е. наводить короткоживущую “оптическую микрошероховатость”. Такая мгновенная пространственная модуляция оптических постоянных материала может не только принципиально позволить возбуждение ПЭВ на поверхностях с любой топологией рельефа, но и дать возможность управлять характеристиками ПЭВ, варьируя амплитуду этой модуляции [6].

В настоящей работе сообщается о наблюдении с помощью метода оптической микроскопии отражения с фемтосекундным временным разрешением поверхностной электромагнитной волны, возбужденной на атомно-гладкой поверхности кремния ИК УКИ накачки, в виде микромасштабной решетки модуляции отражения с субпикосекундным временем жизни. Модуляционная решетка возникает в области фотовозбуждения поверхности кремния в течение возбуждающего УКИ в результате генерации электрон-дырочной плазмы и соответствующей электронной перенормировки зонного спектра в максимумах интерференции ПЭВ и того же УКИ. Появление короткоживущих поверхностных решеток отражения сопровождается формированием решеток рельефа с близким периодом.

2. Одноимпульсное лазерное облучение свежих участков мишени Si (атомно-гладкой пластины нелегированного кремния Si(100) толщиной 0.45 мм

¹⁾e-mail: sikudr@lebedev.ru

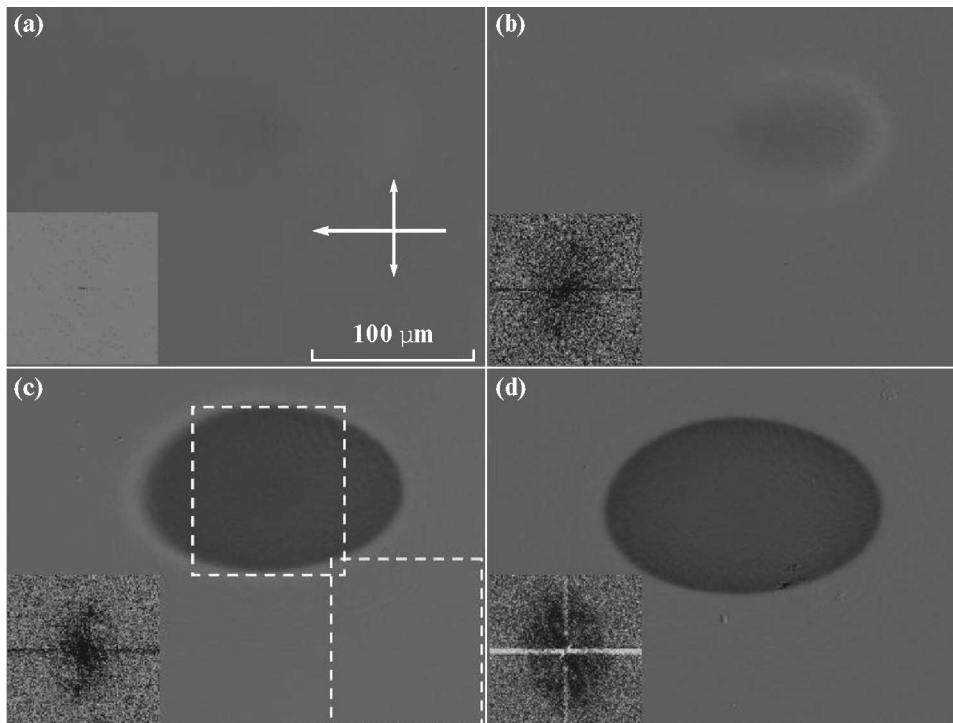


Рис. 1. Микроснимки (массив значений $R_{2\omega}(X, Y)$) поверхности кремния, фотовозбужденной ИК (800 нм) УКИ накачки при $F \approx 1.6$ Дж/см², в отраженном свете пробного УКИ (400 нм), задержанного на $\Delta t = 0$ пс (а), +0.1 пс (б), +0.5 пс (с) и +1 пс (д). В нижних левых углах снимков приведены соответствующие двумерные фурье-спектры для области модуляции отражения фотовозбужденного материала (см. верхний штриховой квадрат на рис. с) за вычетом фона (спектр взят вне области фотовозбуждения, см. нижний штриховой квадрат на рис. с). Горизонтальная и вертикальная стрелки показывают направление падения и поляризацию УКИ накачки

с естественным оксидным слоем толщиной в 2–3 нм) осуществлялось УКИ титан-сапфирового лазера (центральная длина волны $\lambda_{\text{las}} = 800$ нм, спектральная ширина на полувысоте 12 нм, длительность импульса на полувысоте $\tau_{\text{las}} \approx 90$ фс, энергия импульса в ТЕМ₀₀-режиме – до нескольких мДж, частота следования 10 Гц). При этом использовался электромеханический затвор, а мишень перемещалась от одного лазерного импульса к другому на трехкоординатном моторизованном микростолике (схема установки дана в работе [7]). Энергия УКИ была выбрана ≤ 0.2 мДж. Она плавно регулировалась с помощью четвертьволновой пластины и призмы Глана.

В схеме оптической микроскопии отражения с временным разрешением [7] использовались мощный ИК (800 нм) УКИ накачки и более слабый (на порядок) пробный задержанный ($\Delta t = (0.1\text{--}3000)$ пс) УФ УКИ (2ω , 400 нм), генерируемый в виде второй гармоники (ВГ) в кристалле бората бария толщиной 1.5 мм. Инфракрасные УКИ накачки с s-поляризацией фокусировались под углом 45° стек-

лянной линзой (фокусное расстояние $f = 50$ см) на поверхность мишени Si в эллиптическое пятно (радиусы $\varnothing_{1/e,x} \approx 0.10$ мм и $\varnothing_{1/e,y} \approx 0.05$ мм, величина пиковой плотности энергии F – до 1.6 Дж/см²) с центровкой на оптической оси микрообъектива (числовая апертура $\text{NA} = 0.37$, обеспечивающая оптическое пространственное разрешение ≈ 1 мкм) в канале зондирования поверхности пробным УКИ ВГ. Исходное отражение пробных УКИ $R_{2\omega,0}$ для поверхности мишени Si было откалибровано с помощью алюминиевого зеркала (отражение для 400 нм при нормальном падении ≈ 0.92), соответствующая величина ≈ 0.496 в согласии с расчетным значением ≈ 0.492 [8]. Были получены оптические микроснимки поверхности кремния для коротких задержек УКИ ВГ $\Delta t = (-0.2\text{--}+1)$ пс (пики интенсивности УКИ накачки и пробного УКИ совпадали в момент $\Delta t = 0$ пс). По ним изучалась микромасштабная пространственная модуляция отражения $\Delta R_{2\omega}(\Delta t) = R_{2\omega}(\Delta t) - R_{2\omega,0}$ в области фотовозбуждения материала. Такая модуляция наиболее заметно проявлялась к концу УКИ накачки. При этом размеры области модуляции уве-

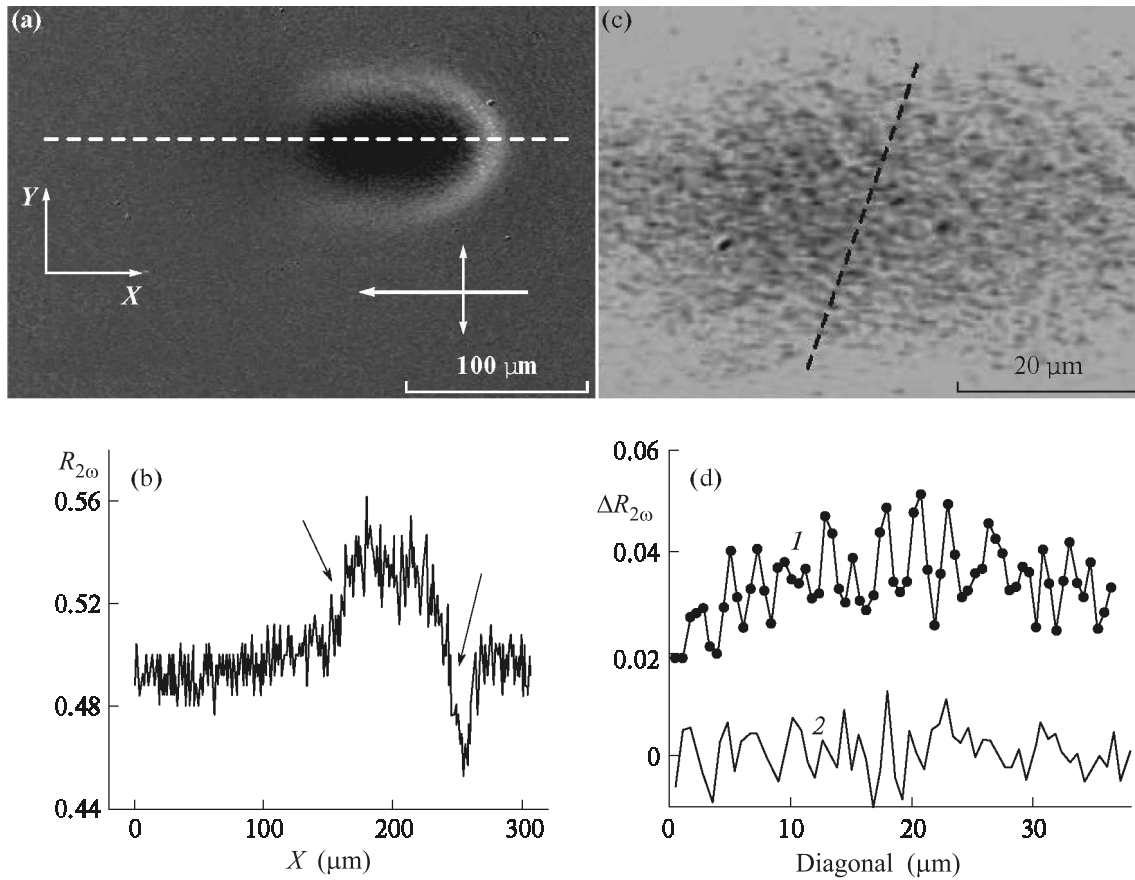


Рис. 2. (a) – Микроснимок (массив значений $R_{2\omega}(X, Y)$) поверхности кремния для $F \approx 1.6$ Дж/см² и $\Delta t = +0.1$ пс (см. рис. 1b). Горизонтальная и вертикальная стрелки показывают направление падения и поляризацию УКИ накачки. Штриховая линия – сечение области фотовозбуждения по координате X , приведенное на рис. b, стрелки на котором указывают области резкого изменения оптических постоянных материала. (c) – Массив значений $\Delta R_{2\omega}(X, Y)$ в этой области фотовозбуждения. Штриховая линия показывает направления сечения области, приведенного на рис. d (1) вместе с уровнем шумов (2)

личивались с ростом задержки пробного излучения (рис. 1), в том числе вследствие “нетеплового плавления” материала, динамика которого сильно зависит от F [9].

3. Как видно из рис. 1b и 2 a, b, уже в конце ИК УКИ накачки ($\Delta t = +0.1$ пс) область фотовозбуждения на поверхности кремния демонстрирует заметную модуляцию отражения пробного УКИ ВГ $R_{2\omega}$ в виде снижения на периферии (до 10%) и роста в центре (до 10%), явно превышающих уровень шума ($\approx 0.5\%$). Происхождение такой биполярной модуляции отражения ранее подробно обсуждалось в рамках модели фотовозбуждения электрондырочной плазмы (ЭДП) и существенной безынерционной электронной перенормировки зонного спектра (см. [10] и указанную там литературу). Профиль области фотовозбуждения по горизонтали имеет довольно резкий (шириной в несколько микро-

метров) градиент в зоне перехода от минимума к максимуму отражения (рис. 2b). Поэтому данная область может уже в масштабе УКИ накачки выступать в качестве эффективного дифракционного элемента. Кроме того, дифракция УКИ накачки может также происходить на флуктуациях плотности фотовозбужденной ЭДП, которые способны нарастать по всему спектру в силу самозахвата ЭДП при плазма-индуцированном сужении зонной щели [11–12]. Однако наибольшие инкременты нарастания имеют именно флуктуационные моды с сильной положительной оптической обратной связью [11].

Вместе с тем более подробный пространственный анализ величины $\Delta R_{2\omega}(+0.1$ пс) в области возбуждения показывает наличие отчетливой квазипериодической модуляции отражения с ориентацией штрихов такой решетки практически перпендикулярно s -поляризации поля УКИ накачки (рис. 2c).

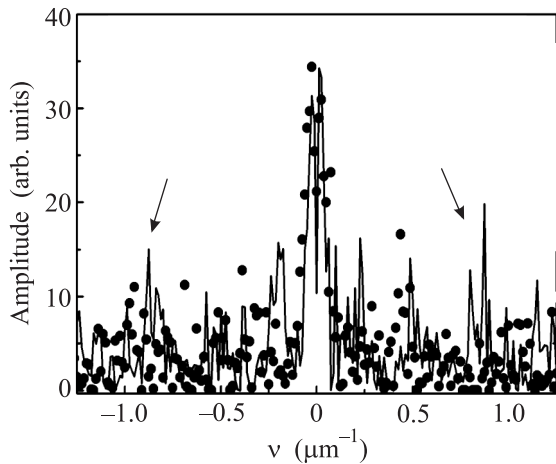


Рис. 3. Профили двумерного фурье-спектра области фотовозбуждения на рис. 1b (за вычетом фона) по линии рефлексов (сплошные линии, рефлекссы показаны стрелками) и перпендикулярно ей (точки, приведены для сравнения)

Согласно фурье-анализу одномерного профиля $\Delta R_{2\omega}$ на рис. 2d периоды решетки $L_S(45^\circ)$ в направлении, перпендикулярном штрихам, варьируются в пределах 1.5–3 мкм на фоне существенного уровня шумов. Более аккуратный двумерный фурье-анализ данной области фотовозбуждения (см. фурье-спектр на вставке к рис. 1b) дает величины $L_S(45^\circ) \approx (1.1–1.2)$ мкм (рис. 3). Установленные значения $L_S(45^\circ)$ неплохо согласуются с длиной волны ПЭВ $\Lambda_S(45^\circ) \approx 1.1$ мкм, возбуждаемой наклонно падающим *s*-поляризованным излучением с длиной волны $\lambda_{\text{las}} \approx 0.8$ мкм [13]:

$$\Lambda_S(\theta) \approx \lambda_{\text{las}} / \cos \theta. \quad (1)$$

Это может указывать на то, что данные решетки отражательной способности возникают в результате интерференции УКИ накачки и ПЭВ, возбуждаемой в области фотовозбуждения, согласно общепринятой “интерференционной” модели лазерно-индуцированного формирования одномерных нанорешеток рельефа [13]. Действительно, двумерный спектр для области возбуждения на рис. 1b, полученный с использованием процедуры быстрого преобразования Фурье, после вычитания спектра фона (вне области фотовозбуждения) демонстрирует четкую ориентацию данной решетки под небольшим углом к вектору поляризации УКИ накачки, а его одномерный профиль на рис. 3 показывает хорошее согласие периода решетки $L_S(45^\circ)$ и длины волны ПЭВ $\Lambda_S(45^\circ)$.

Соответственно, амплитуда квазипериодических модуляций (решеток) отражения ($\approx 6\%$) на рис. 2b

и d может быть соотнесена, согласно данным по зависимостям для коэффициента отражения пробного излучения $R_{2\omega}(F)$ и плотности ЭДП $\rho_{\text{eh}}(F)$ из работы [10], со значительными мгновенными локальными модуляциями плотности ЭДП ($\Delta\rho_{\text{eh}} \approx 1 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$ при средней величине $\rho_{\text{eh}} \approx 5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$) и плотности энергии ($\Delta F \approx (0.3–0.5) \text{ Дж/см}^2$ при средней величине $F \approx 1.6 \text{ Дж/см}^2$) в максимумах интерференции “ПЭВ–УКИ накачки”. Это указывает на довольно сильную дифракционную подкачку возбуждаемых мод ПЭВ. Приведенные значения $\rho_{\text{eh}} \approx 5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$ позволяют объяснить исчезновение решеток на фурье-спектрах рис. 1 в течение первой пикосекунды быстрой оже-рекомбинацией фотогенированной плотной плазмы (характерное время рекомбинации $\tau_A \approx (\gamma_A \rho_{\text{eh}}^2)^{-1} \sim (0.1–1) \text{ пс}$ [13] для коэффициента оже-рекомбинации кремния $\gamma_A \approx 4 \cdot 10^{-31} \text{ см}^6/\text{с}$ [14]) и последующей субпикосекундной ($\approx 0.24 \text{ пс}$) электрон-фононной релаксацией горячих носителей [15].

Примечательно, что на микроснимках атомно-гладкой поверхности кремния (рис. 4a и b) после одноимпульсного воздействия УКИ накачки наряду с кольцеобразными дифракционными структурами вокруг микропылинок впервые наблюдаются упорядоченные одномерные микрорешетки рельефа поверхности практически с той же ориентацией и средним периодом $D_S(45^\circ) \approx 1.3$ мкм (рис. 4c и d). Данные микрорешетки рельефа по среднему периоду хорошо согласуются с мгновенными величинами $\Lambda_S(45^\circ) \approx 1.1$ мкм и $L_S(45^\circ) \approx (1.1–1.2)$ мкм. Это позволяет предположить корреляцию явлений формирования мгновенных микрорешеток отражения на рис. 1 и “замороженных” микрорешеток рельефа на рис. 4.

В заключение отметим, что аналогичные квазипериодические структуры абляционного (откольного) происхождения с околотовновым периодом ≈ 1 мкм наблюдались нами после одноимпульсного воздействия УКИ иттербиевого волоконного лазера с длиной волны 1.03 мкм в нормальном падении на медном зеркале (рис. 5). Очевидно, что высокая плотность энергии УКИ ($F \approx 1 \text{ Дж/см}^2$) в данном случае также может обеспечивать существенную модуляцию оптических постоянных этого металла в области фотовозбуждения, необходимую для дифракции УКИ накачки при незначительной шероховатости поверхности.

4. Итак, в настоящей работе впервые экспериментально отмечено возбуждение на атомно-гладкой поверхности кремния под действием ИК фемтосекундного лазерного импульса поверхностной

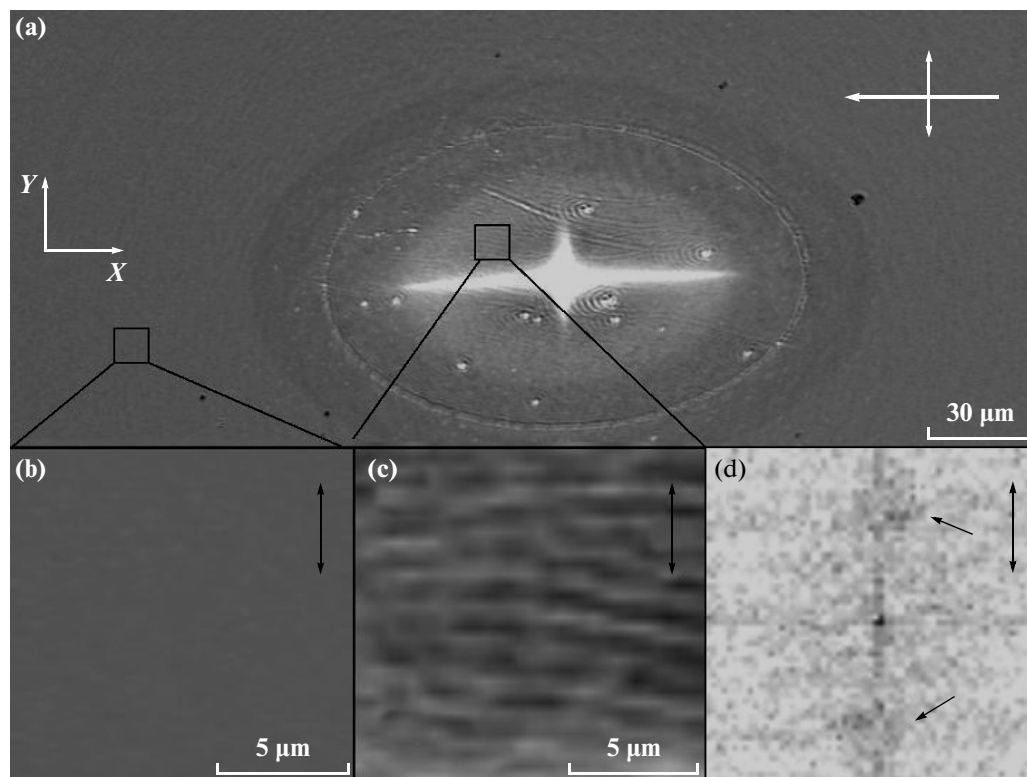


Рис. 4. (a) – Микроснимок (массив значений $R_{2\omega}(X, Y)$) кратера, возникающего в области фотовозбуждения поверхности кремния при $F \approx 1.6 \text{ Дж/см}^2$. Горизонтальная и вертикальная стрелки показывают направление падения и поляризацию УКИ. Квадраты – области, приведенные с увеличением на рис. b и c. (d) – Двумерный фурье-спектр, представляющий разность фурье-спектров для рис. b и c. Одиночные стрелки показывают темные рефлексы, отвечающие периодической структуре на рис. c, двойные вертикальные стрелки – направление лазерной поляризации

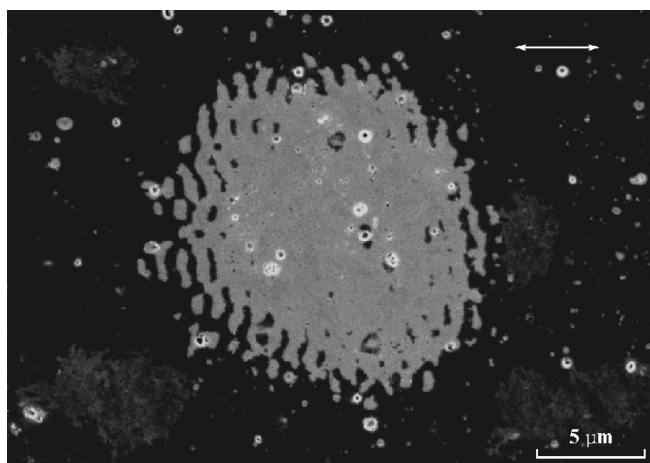


Рис. 5. СЭМ-снимок области абляционной модификации поверхности медного зеркала при ее фотовозбуждении УКИ при нормальном падении и $F \approx 1 \text{ Дж/см}^2$ (поляризация УКИ показана горизонтальной стрелкой)

электромагнитной волны, наблюдаемой в виде микромасштабной решетки модуляции отражения с

суб-пикосекундным временем жизни. Модуляционная микрорешетка отражения возникает в течение возбуждающего лазерного импульса в области фотовозбуждения (путем генерации электрон-дырочной плазмы и электронной перенормировки зонного спектра) поверхности кремния. Она обеспечивает дифракцию этого импульса на самонаведенной “оптической микрошероховатости” поверхности, возбуждение поверхностных электромагнитных волн и последующую интерференцию с ними. Как это впервые отмечено, образование мгновенных микрорешеток отражения завершается формированием одномерных микрорешеток рельефа поверхности кремния, упорядоченных по поляризации лазерного излучения.

Исследование выполнено при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 10-08-00941-а) и Министерства образования и науки Российской Федерации (соглашение # 8680).

1. H. Raether, *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings*, Berlin, Springer, 1988.

2. С. А. Майер, *Плазмоника: Теория и приложения*, М.: R&C dynamics, 2011.
3. X. Y. Wang and M. C. Downer, *Opt. Lett.* **17**, 1450 (1992).
4. K. Sokolowski-Tinten and D. von der Linde, *Phys. Rev. B* **61**, 2643 (2000).
5. С. И. Кудряшов, В. И. Емельянов, *Письма в ЖЭТФ* **73**, 751 (2001).
6. Е. В. Голосов, А. А. Ионин, Ю. Р. Колобов и др., *ЖЭТФ* **140**, 21 (2011).
7. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, Л. В. Селезнев и др., *Письма в ЖЭТФ* **94**, 816 (2011).
8. *Handbook of Optical Constants of Solids* (ed. by E. D. Palik), Academic Press, Orlando, 1998.
9. С. И. Кудряшов, В. И. Емельянов, *ЖЭТФ* **121**, 113 (2002).
10. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, С. В. Макаров и др., *Письма в ЖЭТФ* **96**, 413 (2012).
11. В. В. Капаев, Ю. В. Копаев, С. Н. Молотков, *Микроэлектроника* **12**(6), 499 (1983).
12. В. И. Емельянов, И. Ф. Уварова, *ЖЭТФ* **94**, 255 (1988).
13. С. А. Ахманов, В. И. Емельянов, Н. И. Коротеев, В. Н. Семиногов, *УФН* **147**, 675 (1985).
14. C. V. Shank, R. Yen, and C. Hirlimann, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 454 (1983).
15. T. Ichibayashi and K. Tanimura, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 087403 (2009).