

文章编号: 1001-3806(2015)06-0765-04

纳秒和飞秒激光烧蚀单晶硅的超快诊断

田润妮, 王俊波, 邱荣*, 周强, 蒋勇, 杨永佳

(西南科技大学-中国工程物理研究院 激光聚变中心 极端条件物质特性联合实验室, 绵阳 621010)

摘要: 为了研究强激光烧蚀单晶硅的超快动力学过程, 采用超快时间分辨光学诊断技术, 对比研究了纳秒和飞秒脉冲激光烧蚀单晶硅样品表面的动态过程, 获得了冲击波、等离子体和物质喷发的产生与演化过程的时间分辨图像。对于纳秒激光, 当延迟时间为 200ns ~ 300ns 时, 观察到物质喷发现象出现, 此时喷发物为气液混合物, 当延迟时间为 1060ns 时, 喷发物为小液滴; 对于飞秒激光, 当延迟时间为 1ns ~ 2ns 时, 观察到物质喷发现象出现, 喷发物为等离子体。结果表明, 在样品表面, 纳秒激光与飞秒激光烧蚀单晶硅的动态过程有显著的不同, 特别是物质喷发时间、喷发物的状态与尺寸; 纳秒和飞秒激光辐照单晶硅表面引起的物质喷发都是不连续的, 在激光烧蚀单晶硅引起表面物质喷发的过程中, 不同的作用时间由不同的烧蚀机制主导。该结果对深入研究激光与单晶硅相互作用机制及激光刻蚀单晶硅等应用有一定帮助。

关键词: 超快光学; 物质喷发; 超快诊断; 冲击波; 等离子体

中图分类号: O434.14 **文献标志码:** A **doi:** 10.7510/jgjs.issn.1001-3806.2015.06.007

Ultra-fast diagnosis of monocrystalline silicon ablated by ns and fs laser

TIAN Runni, WANG Junbo, QIU Rong, ZHOU Qiang, JIANG Yong, YANG Yongjia

(Joint Laboratory for Extreme Conditions Matter Properties, Southwest University of Science and Technology and Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621010, China)

Abstract: In order to study ultrafast dynamics of high power laser ablation of silica, the dynamic process of monocrystalline silicon ablated by nanosecond (ns) and femtosecond (fs) laser was investigated by the technology of ultrafast time-resolved optical diagnosis. The time-resolved shadowgraphs of the formation and evolution process of plasma expansion, material ejection and shock waves were obtained. For ns laser, material ejection occurs at 200ns ~ 300ns of delay time with gas-liquid mixture and at 1060ns of delay time with droplet ejection. For fs laser, material ejection occurs at 1ns ~ 2ns of delay time with plasma. The result shows that the dynamic process of laser ablation is significantly different between by fs laser and by ns laser, especially the time of material ejection and the state and size of ejection particles. The results indicate that the process of material ejection induced by ns and fs laser is discontinuous and show that the material ejection is caused by different ablation mechanisms in different time. The results are helpful for the study of interaction mechanism of laser and silica, as well as laser etching monocrystalline silicon.

Key words: ultrafast optics; material ejection; ultrafast diagnostic; shock wave; plasma

引言

单晶硅是制造半导体器件的理想材料, 被广泛应用于半导体和太阳能光伏产业。近年来随着高功率脉冲激光在工业、国防和科研领域的广泛应用, 如飞秒烧蚀微加工^[1-2]、纳米微结构形成^[3-5]、太阳能电池和光电探测器制造^[6-7], 使单晶硅的应用领域进一步扩大。

然而, 激光与半导体材料相互作用是一个复杂的过程, 该过程中的激光能量沉积和能量转移与激光参量、材料特性以及环境有密切关系。因此, 研究高功率脉冲激光烧蚀单晶硅的过程及物理机制有重要意义。

对于脉冲激光烧蚀物质的机制, 已发展了多种理论, 诸如相爆炸^[8]、库伦爆炸^[9]、热弹性波^[10]等。PEREZ 等人^[11-12]用分子动力学方法研究了飞秒脉冲激光烧蚀固体材料, 认为飞秒激光烧蚀固体材料包含分裂、同质成核、汽化 3 个过程, 这些过程都与激光能量的沉积有关。MARTYNYUK^[13]首先提出了激光烧蚀材料的相爆炸理论。CHEN 等人^[14]基于相爆炸理论建立了两步加热模型, 研究了真空中超短脉冲激光烧蚀金属材料的超热和物质移除过程, 发现利用两步

基金项目: 国家自然科学基金-中国工程物理研究院联合基金资助项目(10976025)

作者简介: 田润妮(1984-), 女, 硕士研究生, 主要从事激光与物质相互作用研究。

* 通讯联系人。E-mail: qieurong@swust.edu.cn

收稿日期: 2014-09-09; 收到修改稿日期: 2014-11-03

加热模型理论计算的烧蚀深度和实验数据符合得很好。YOO 等人^[15]研究了高功率纳秒激光烧蚀硅材料过程中的相爆炸和大粒子的产生,发现超热液体层内的相爆炸产生了粒子喷发物。ZHANG 等人^[16]研究了飞秒激光烧蚀金属铝材料的物质喷发过程,认为烧蚀过程是包括热和非热烧蚀机制混合的材料移除过程。对短脉冲强激光的烧蚀机制还需进一步研究,对比研究飞秒和纳秒激光烧蚀单晶硅的动力学过程,有助于对单晶硅烧蚀过程中激光能量转换和转移的机制进行讨论和分析。

本文中利用抽运-探测技术对比研究了飞秒和纳秒脉冲激光烧蚀单晶硅的动力学过程,特别是物质的烧蚀喷发过程。通过观察等离子体、冲击波和物质喷发的产生和发展过程,对比研究飞秒激光和纳秒激光与单晶硅相互作用的动力学过程,讨论并分析了脉冲激光与物质相互作用的机制。

1 实验方法及内容

实验光路示意图如图 1 所示。采用 Spectra-Physics 公司的 LAB190-10 调 Q Nd:YAG 激光器(波长 1064nm,脉宽 10ns)和掺钛蓝宝石飞秒激光系统(脉宽 50fs,中心波长 800nm,重复频率 10Hz,单脉冲最大能量 35mJ),使用 PI 公司的 ES3200 工业 CCD 作为图像采集相机,采用 WaveSurfer104Xs 示波器结合光电探测器测量抽运激光和探测激光脉冲之间的延迟时间,用同步信号发生器(DG645)控制纳秒和飞秒激光器的触发、机械快门和 CCD 快门的开启时间。抽运光经透镜

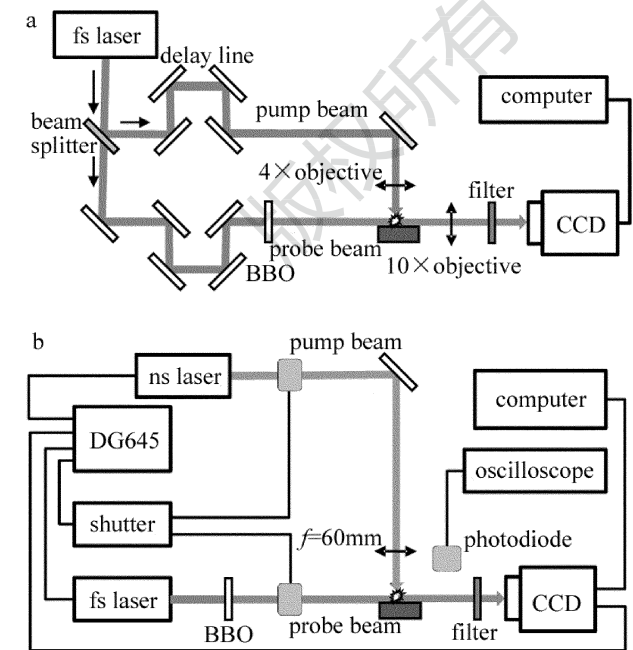


Fig. 1 Schematic diagram of experimental setup of laser ablation of silicon
a—femtosecond laser b—nanosecond laser

聚焦到样品表面,探测光经 BBO 晶体倍频后通过作用区域,为防止基频光和等离子体发光进入到 CCD,探测光经窄带通滤光片和中性密度衰减片后进入到 CCD。图 1a 为飞秒激光烧蚀单晶硅的实验光路示意图,利用分光原理得到抽运光和探测光,利用光学延迟线控制时间延迟,时间延迟范围受实验室空间的限制。图 1b 为纳秒激光烧蚀单晶硅的实验光路示意图,激发光为倍频后的纳秒激光(532nm),利用信号发生器控制抽运光(纳秒激光)和探测光(飞秒激光)的时间延迟,时间延迟精度受激光器时钟精度的影响。实验样品采用厚度 400μm 的抛光单晶硅片。

2 结果与讨论

图 2 是波长为 800nm,脉宽 50fs、单脉冲能量 8mJ、平均能量密度约 32J/cm² 的飞秒激光烧蚀单晶硅过程的时间分辨阴影图。图中反映了冲击波、等离子体和物质喷发的产生与发展过程,其中图 2a 是延迟时间为 0.6ns 时的图像,图中箭头所示区域(见标识 C)为等离子体区,此时等离子体温度和密度都较高,透光率低。随着延迟时间增加,等离子体迅速膨胀,压缩周围空气形成冲击波。在延迟 1.3ns 和 2.3ns 时,可清楚观察到物质喷发现象,如图 2b 和图 2c 中箭头所指区域(见标识 A)。随着等离子体膨胀,其温度降低、自由电子密度下降,冲击波内部的透光率增加。

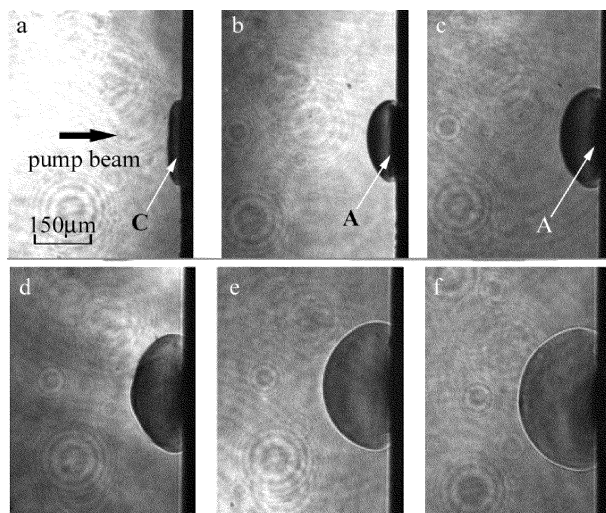


Fig. 2 Time-resolved shadow graphs of fs laser pulse ablation of silicon
a—0.6ns b—1.3ns c—2.3ns d—4.3ns e—6.3ns f—8.2ns

飞秒激光烧蚀单晶硅形成的等离子体和冲击波初期呈扁平状,这是由激光光斑导致的,样品表面吸收激光能量,整个光斑辐照区域的表面材料和杂质同时被电离产生等离子体,随后等离子体膨胀逐渐形成球形冲击波。由于飞秒激光脉宽短,能量在材料内来不及重新分布脉冲已经结束,脉冲激光与等离子体的相互

作用弱,可以不考虑等离子体屏蔽效应,所以更多的激光能量被材料吸收用于产生等离子体。虽然随延迟时间增加,透光率逐渐增加,但是由于膨胀半球内等离子体密度仍然很高,导致透光率低,所以膨胀半球内部明显比周围环境要暗。图中冲击波边界是一条亮线,这是因为高温高压等离子体向外膨胀过程中挤压周围空气,使空气产生电离形成的电离发光。

图 3 是波长为 532nm、脉宽为 10ns、单脉冲能量为 48mJ、平均能量密度约为 78J/cm² 的纳秒激光烧蚀单晶硅过程的时间分辨阴影图。激光脉冲刚结束时,辐照区域为高温高密度的等离子体,如图 3a 所示。随延迟时间增加,等离子体膨胀压缩周围空气形成冲击波。随着延迟时间增加,等离子体膨胀很快,由于图 3 中选取的延迟时间间隔较大,所以在随后的图中冲击波半球迅速变大,等离子体密度迅速下降,透光率增加,所以冲击波半球内部亮度和周围环境相差不大。从图 3d 和图 3e 中的标识 A 区域可观察到物质喷发,喷发物已经从靶面分离,其形态与飞秒激光烧蚀形成的喷发物完全不同。图 4 为 1060ns 延时的时间分辨阴影图及其局部放大图。从图中可以清晰的看到此时物质

喷发演化的形态,喷发物呈液滴状,直径在 25μm ~ 35μm 之间。

在纳秒激光烧蚀单晶硅的过程中,当激光脉冲刚结束时,表面喷发物主要是等离子体。在延迟 200ns ~ 300ns 时,观察到物质移除开始出现,这与参考文献 [17] 中所述相似。在延迟 356ns 和 495ns 时,观察到的物质喷发为气液混合物,对于纳秒激光,由于脉冲持续时间较长,热传导和等离子体屏蔽效应明显^[18],导致材料吸收激光能量效率降低,而且冲击波的膨胀会导致内部等离子体密度与温度下降以及内部透光率增加,从而易于分析喷发物。当延迟时间为 1060ns 时,观察到喷发物主要是液滴,其半径为 25μm ~ 35μm,这与参考文献 [15] 和参考文献 [19] 中的结果基本一致,当样品接近单晶硅热力学临界温度时,同质成核高速形成,在近表面区域爆炸为蒸汽和液滴的混合物。对比图 2、图 3 中冲击波边界线较暗,是因为纳秒烧蚀观测延迟时间较长,等离子体温度下降,电离发光不存在。根据实验结果可以得到冲击波前端位置与样品表面的距离 R 和时间 t 的关系,如图 5 所示。依据 SEDOV 的爆炸波理论,对一个半球形的冲击波,靶材的表面和爆炸波前位置之间的膨胀距离 R 取决于转化为等离子状态的激光能量 E 。 R 和 E 之间的关系可以通过 SEDOV 的爆炸理论进行估算^[20]:

$$R = C \left(\frac{E}{\rho} \right)^{\frac{1}{5}} t^{\frac{2}{5}} \quad (1)$$

式中, C 是常数,约等于 1, E 是驱动等离子体膨胀的能量, ρ 是空气的质量密度, R 是等离子膨胀半径, t 为时

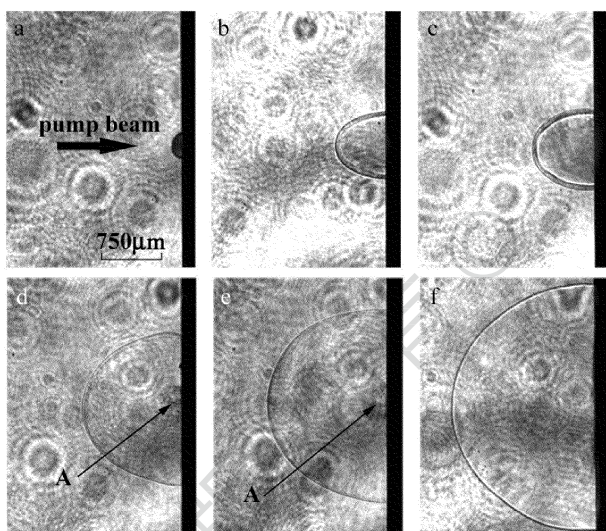


Fig. 3 Time-resolved shadow graphs of ns laser pulse ablation of silicon
a—13ns b—78ns c—163ns d—356ns e—495ns f—896ns

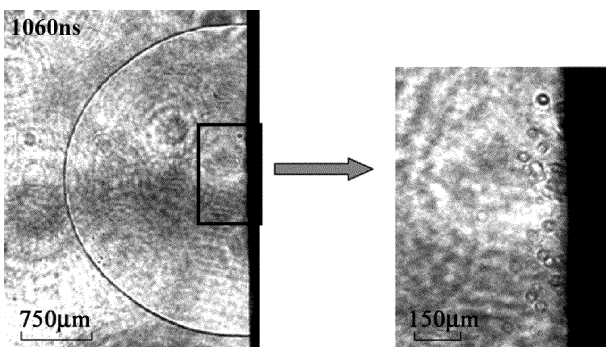


Fig. 4 Time-resolved shadow graphs and the partial enlarged shadow graphs of ns pulse laser ablation of silicon at 1060ns delay time

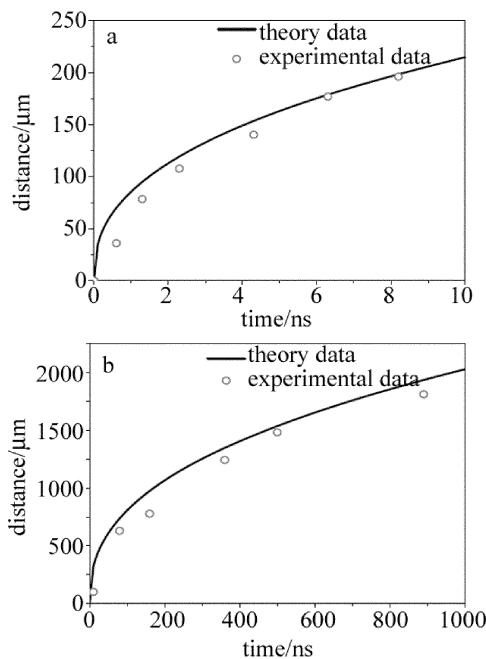


Fig. 5 Distance from shock wave front to surface vs. time delay
a—femtosecond laser b—nanosecond laser

间。半径 R 和时间 t 遵循图 5 的规律。从图 5 可看出,实验值与理论值的趋势非常吻合,因此可以用 SEDOV 的爆炸理论解释实验观察到的冲击波膨胀过程。

从上述结果分析,喷发过程的不连续及喷发时间和喷发物的变化表明,激光烧蚀过程在不同的时间其主导机制不同,其中相爆炸和热弹性波起到了重要作用。当样品被快速加热,熔化层变为超热层时就会发生相爆炸,相爆炸的阈值为 $(0.8 \sim 0.9) T_c$ ($T_c = 7925\text{K}$,是硅的热力学临界温度)。对于飞秒和纳秒脉冲激光烧蚀单晶硅,开始都是由于聚焦后的高能量密度激光脉冲照射到样品,样品表层材料、污染物、样品表面附近的空气中存在少量自由电子被激光电离,导致材料表面等离子体化,等离子体膨胀压缩周围空气形成冲击波。接着由于热弹性波膨胀压缩样品的反作用,都出现了物质喷发现象,只是物质喷发时间和喷发物的形态和尺寸不同,飞秒激光烧蚀在 $1\text{ns} \sim 2\text{ns}$ 延迟时间开始出现物质喷发,喷发物为等离子体;纳秒激光烧蚀在 $200\text{ns} \sim 300\text{ns}$ 延迟时间开始出现物质喷发,观察到的喷发物为气液混合物, 1060ns 延迟时间测量到 $25\mu\text{m} \sim 35\mu\text{m}$ 的小滴喷发物,形成这种不同的原因可能是飞秒和纳秒激光脉宽及激光能量密度不同。同时飞秒和纳秒脉冲激光烧蚀单晶硅形成的冲击波膨胀都很好的符合 SEDOV 的爆炸理论。

3 结论

基于抽运-探测系统的超快时间分辨技术对比研究了飞秒和纳秒激光烧蚀单晶硅材料表面的动态过程,实验获得了飞秒激光和纳秒激光烧蚀单晶硅表面后等离子体、冲击波和物质喷发的产生和演化过程。飞秒和纳秒激光烧蚀单晶硅过程中都出现了不连续的物质喷发,表明在脉冲激光烧蚀单晶硅的过程中,存在多种烧蚀机制,不同时间阶段由不同的机制主导。分析表明,烧蚀过程中相爆炸和热弹性波起着重要的作用。此研究结果有助于进一步理解脉冲激光烧蚀单晶硅的物理机制。

参 考 文 献

- [1] XIA B, JIANG L, WANG S M, *et al.* Femtosecond laser drilling of micro-holes[J]. Chinese Journal of Lasers, 2013, 40(2): 0201001 (in Chinese).
- [2] BAI L, ZHAO X L, LIU Y, *et al.* Optical fiber micro-hole sensor fabricated with femtosecond laser[J]. Laser Technology, 2013, 37(1):101-104(in Chinese).
- [3] YUAN Ch H, LI X H, TANG D Ch, *et al.* Influence of wavelength and atmosphere on laser induced microstructure of silicon surface[J]. Laser Technology, 2010, 34(5):647-649 (in Chinese).
- [4] YE X, ZHOU M, YU Z, *et al.* Periodical micro-structure and parameter optimization of pyrolytic carbon surface induced by nanosecond laser[J]. Laser Technology, 2013, 37(4): 537-540 (in Chinese).
- [5] KANG X M, YU L, YANG G F, *et al.* Experimental research of increase-friction characteristics of no-match friction-pair surface based on laser micro-modelling[J]. Laser Technology, 2013, 37(4): 449-454 (in Chinese).
- [6] CHEN Zh D, WU Q, YANG M, *et al.* Generation and evolution of plasma during femtosecond laser ablation of silicon in different ambient gases[J]. Laser and Particle Beams, 2013, 31(3):539-545.
- [7] CHEN Zh D, WU Q, YANG M, *et al.* Time-resolved photoluminescence of silicon microstructures fabricated by femtosecond laser in air[J]. Optics Express, 2013, 21(18):21329-21336.
- [8] LORAZO P, LEWIS L J, MEUNIER M. Short-pulse laser ablation of solids: from phase explosion to fragmentation[J]. Physical Review Letters, 2003, 91(22): 225502.
- [9] ROETERDINK W G, JUURLING L B F, VAUGHAN O P H, *et al.* Coulomb explosion in femtosecond laser ablation of Si (111)[J]. Applied Physics Letters, 2003, 82(23): 4190-4192.
- [10] WANG X, XU X. Thermoplastic wave in metal induced by ultrafast laser pulses[J]. Journal of Thermal Stresses, 2002, 25(5):457-473.
- [11] PEREZ D, LEWIS L J. Ablation of solids under femtosecond laser pulses[J]. Physical Review Letters, 2002, 89(25):255504.
- [12] PEREZ D, LEWIS L J. Molecular-dynamics study of ablation of solids under femtosecond laser pulses[J]. Physical Review, 2003, B67(18):184102.
- [13] MARTYNYUK M M. Vaporization and boiling of liquid metal in an exploding wire[J]. Soviet Physics Technical Physics, 1974, 19(6): 793-797.
- [14] CHEN J K, BERAUN J E. Modelling of ultrashort laser ablation of gold films in vacuum[J]. Journal of Optics, 2003, A5(3): 168-173.
- [15] YOO J H, JEONG S H, MAO X L, *et al.* Evidence for phase-explosion and generation of large particles during high power nanosecond laser ablation of silicon[J]. Applied Physics Letters, 2000, 76(6): 783-785.
- [16] ZHANG N, ZHU X, YANG J, *et al.* Time-resolved shadowgraphs of material ejection in intense femtosecond laser ablation of aluminum[J]. Physical Review Letters, 2007, 99(16): 167602.
- [17] ZHOU Y, WU B, TAO S, *et al.* Physical mechanism of silicon ablation with long nanosecond laser pulses at 1064nm through time-resolved observation[J]. Applied Surface Science, 2011, 257(7): 2886-2890.
- [18] SALLÉ B, GOBERT O, MEYBADIER P, *et al.* Femtosecond and picosecond laser microablation: ablation efficiency and laser microplasma expansion[J]. Applied Physics, 1999, A69(1): S381-S383.
- [19] WANG K P, ZHANG Q H. The ablation microstructures of mono crystalline silicon by high power nanosecond laser[J]. Laser Journal, 2012, 33(5): 36-37 (in Chinese).
- [20] ADEN M, KREUTZ E W, SCHLÜTER H, *et al.* The applicability of the Sedov-Taylor scaling during material removal of metals and oxide layers with pulsed and excimer laser radiation[J]. Journal of Physics, 1997, D30(6): 980-989.