

УДК 533.9

ОБРАЗОВАНИЕ ПЛАЗМЫ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ НА МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИЙ КРЕМНИЙ МИЛЛИСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРА

М. Го^{*,**}, Г. Цзинь^{***}, С. Гао^{***}

* Междисциплинарный технологический институт квантовой информатики
Гилинского технического университета, 130052 Чанчунь, Китай

** Гилинская лаборатория квантовой информатики, Чанчунь, Китай

*** Школа наук Чанчуньского университета наук и технологий, 130022 Чанчунь, Китай
E-mails: guoming1012@sina.com, lasercust@sina.com, lasergx@sina.com

Исследована абляция монокристаллического кремния в окружающую среду при воздействии на него миллисекундного оптического лазера марки Nd:YAG с длиной волны излучения, равной 1064 нм. С использованием теневого метода изучен процесс расширения плазмы при плотности энергии лазера $955,4 \div 2736,0$ Дж/см². Показано, что внешняя граница плазменного факела с течением времени диффундирует в окружающую среду, расширение плазмы происходит как в осевом, так и в радиальном направлении, при этом скорость расширения плазмы в радиальном направлении меньше, чем в осевом. Две центральные линии действия лазера симметричны. Установлено, что максимальная скорость расширения плазмы, равная 162,1 м/с, достигается при плотности энергии лазера, равной 2376,0 Дж/см², при этом образуется волна горения. Показано, что в отличие от случая воздействия на монокристаллический кремний короткоимпульсного лазера, при воздействии миллисекундного лазера существует два интервала времени, на которых скорость расширения плазмы увеличивается. При воздействии лазера с большой плотностью энергии происходит вспышка материала.

Ключевые слова: миллисекундный лазер, монокристаллический кремний, плазма, теневая фотография.

DOI: 10.15372/PMTF20180524

Введение. Исследование процесса образования плазмы под воздействием лазера является актуальным, поскольку данное явление встречается во многих технологических процессах (при лазерной абляции для создания тонких пленок, при микрообработке, изготовлении наноматериалов, анализе химического состава материалов) [1–5]. В случае воздействия мощного лазера на монокристаллический кремний происходит перенос массы с его поверхности, образование и расширение плазменного облака. Для исследования процесса расширения плазмы используются методы оптической интерференции, диагностика спектра, метод лазерной теневой фотографии и др. [6–9]. Очевидны преимущества метода теневой фотографии, позволяющего получить информацию о расширении плазмы как в пространстве, так и со временем. Поскольку пространственный градиент коэффициента преломления плазмы перпендикулярен направлению распространения лазерного луча, при

прохождении пробного луча через плазму и фронт ударной волны он отклоняется и меняет интенсивность луча прибора с зарядовой связью, в результате получаются теневые фотографии с высоким разрешением, позволяющие определить границы области расширения плазмы. Достаточно хорошо исследован процесс образования и расширения плазмы, индуцированный воздействием короткоимпульсных лазеров на поверхности металлических мишеней. Однако образование и расширение плазмы, индуцированные воздействием миллисекундного лазера на поверхность монокристаллического кремния, изучены недостаточно.

Под действием миллисекундного лазера образование и активация плазмы происходят не одновременно, между этими процессами возникает задержка времени. Монокристаллический кремний используется для производства стекла и подложек, при изготовлении оптических электронных устройств. При воздействии лазера на монокристаллический кремний может происходить образование плазмы, сопровождающееся свечением, всплесками и т. п. Поэтому необходимо дальнейшее исследование процесса образования плазмы в результате абляции монокристаллического кремния под воздействием лазера.

В настоящей работе с использованием высокоскоростной камеры и оптических устройств для получения теневых фотографий в различные моменты времени исследуются скорость расширения плазмы и размер области ее расширения при воздействии лазера различной мощности.

1. Экспериментальная установка. Схема экспериментальной установки, на которой проводилось исследование процесса образования плазмы на поверхности образца из монокристаллического кремния под воздействием лазера, показана на рис. 1. В эксперименте использовалась импульсная лазерная установка Melar-100Nd:YAG с единичным выходным импульсом производства корпорации Beamtech Optronics Co., Ltd со следующими характеристиками: ширина импульса 1 мс, частота повторения импульса 10 Гц, длина

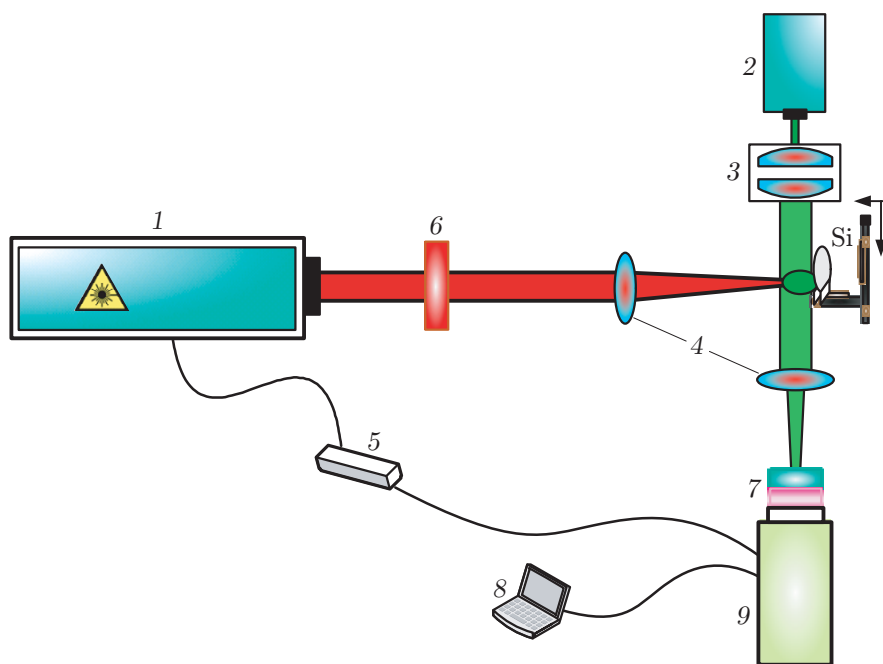


Рис. 1. Схема экспериментальной установки:

1 — лазерная система Melar-100Ms, 2 — узкополосный диодный лазер, 3 — расширитель луча, 4 — линзы, 5 — запуск импульса, 6 — аттенюатор, 7 — ослабляющий светофильтр, 8 — компьютер, 9 — высокоскоростная камера V641

волны 1064 нм, максимальная энергия на выходе 100 Дж, распределение лазерного луча близко к распределению Гаусса, диаметр луча на выходе равен 2 см.

Система регулировки энергии, состоящая из односекундной волновой пластины и поляризирующей пленки, и плоско-выпуклая фокусирующая кварцевая линза с фокусным расстоянием 500 мм обеспечивают вертикальное падение луча на поверхность образца из монокристаллического кремния.

После фокусировки диаметр факела равен 2 мм. Образец из монокристаллического кремния крепится на столе, имеющем пять степеней свободы. Система визуализации теневых изображений состоит из высокоскоростной камеры, расширителя луча и формирующей изображение линзы. Зондирующий луч после расширения фокусируется линзой, для получения теневых картин используется высокоскоростная камера со светодиодом. Длина волны полупроводникового лазера равна 532 нм, ширина линии менее 0,7 нм. После расширения в 10 раз с помощью расширяющей системы луч вертикально падает на поверхность, занимаемую расширяющейся плазмой. После формирования изображения линзой энергия луча ослабляется аттенуатором, а интерференционный фильтр создает интерференционный луч. Наблюдение за расширяющейся плазмой проводится с помощью высокоскоростной камеры V641, установленной под углом 90° к лазерному лучу и делающей 10 000 кадр/с. Цифровой генератор импульсов задержки DG645 производства компании Stanford запускается одновременно с лазером. Отполированная с одной стороны кремниевая пластина толщиной 4 мм и диаметром 25,4 мм помещалась на стол с пятью степенями свободы. Для очистки ультразвуком стол на 15 мин погружался в ацетон и метанол. Капли, образующиеся на поверхности образца, удалялись азотом. Затем образец помещался в низкотемпературную сушильную камеру. Эксперименты проводились при комнатной температуре, нормальном атмосферном давлении и влажности 52 %.

2. Результаты эксперимента и их анализ. На рис. 2 приведены фотографии плазменного факела в различные моменты времени. Видно, что при абляции миллисекундным лазером образование плазмы начинается до момента, когда прекращается действие импульса, через 0,1 мс после начала действия луча. Со временем плазменный факел монокристаллического кремния распространяется в окружающую среду. Сначала факел имеет форму правильного полукруга, затем происходит его рассеивание (см. рис. 2). С увеличением плотности энергии лазерного луча увеличивается расстояние, на которое распространяется образовавшееся плазменное облако, со временем отделяющееся от поверхности монокристаллического кремния. При плотности энергии $W > 1981,4$ Дж/см² происходит вспышка плазмы.

Миллисекундный лазер действует в течение продолжительного времени и является источником энергии, необходимой для образования и расширения плазменного облака. Энергия лазера способствует ускоренному расширению плазмы во всех направлениях.

При плотности энергии $W = 1582,4$ Дж/см² в течение времени действия импульса плазменный факел распространяется медленно в установившемся режиме. Внешняя граница факела, имеющая регулярную форму, отчетливо видна. После прекращения действия импульса в момент времени $t = 1,1$ мс плазменное облако принимает форму гриба, при $t = 1,2$ мс грибовидное облако практически отделяется от поверхности монокристаллического кремния. Далее процесс представляет собой процесс самопроизвольного расширения. При плотности энергии $W = 1981,4$ Дж/см² количество отделяющегося от поверхности вещества существенно увеличивается и абляция происходит с большей скоростью, чем при $W = 1582,4$ Дж/см². В отличие от случая воздействия короткоимпульсного лазера при воздействии миллисекундного лазера имеет место калефакция. Форма плазменного факела меняется от сферической к эллипсоидальной. Длина большой оси эллипсоида (в аксиальном направлении) равна 18,9 мм, длина малой оси (в радиальном направлении) —

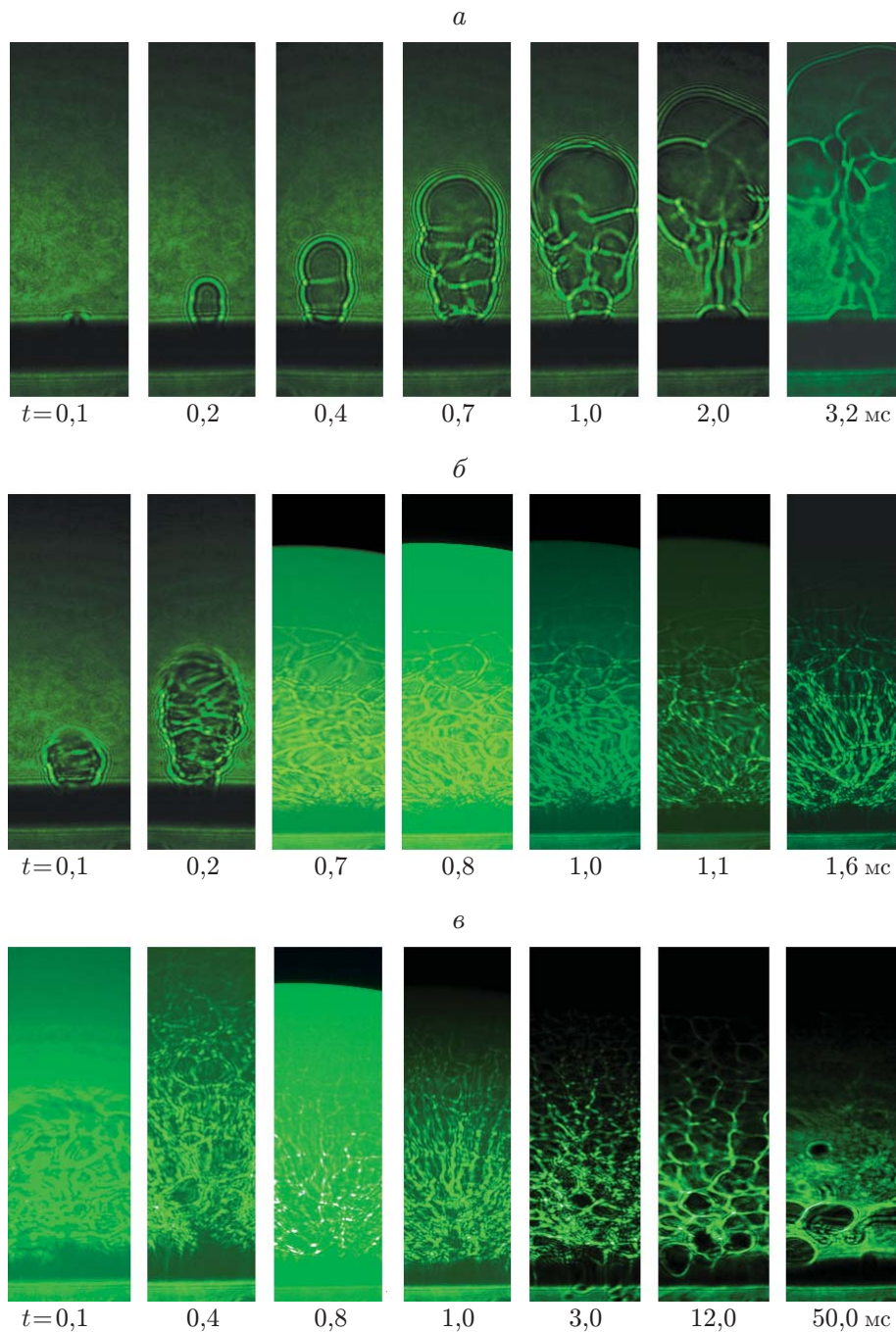


Рис. 2. Расширение плазменного факела монокристаллического кремния в различные моменты времени при различной плотности энергии:
a — $W = 1582,4 \text{ Дж/см}^2$, *b* — $W = 1981,4 \text{ Дж/см}^2$, *в* — $W = 2736,0 \text{ Дж/см}^2$

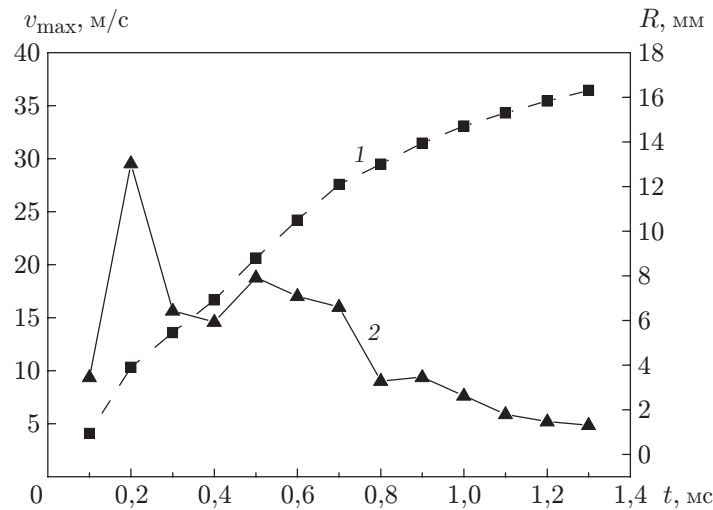


Рис. 3. Зависимости размера области, занимаемой плазмой (1), и скорости ее расширения (2) от времени при $W = 1582,4 \text{ Дж/см}^2$

приблизительно 10,1 мм, две центральные линии действия лазера симметричны. Внешние границы плазменного факела размываются. При $t = 0,7$ мс вследствие столкновения электронов и ионов происходит рекомбинация, сопровождающаяся непрерывным излучением [10], вспышка заполняет всю занимаемую плазмой область, а также прилегающие к ней области. При плотности энергии $W = 2736,0 \text{ Дж/см}^2$ внешняя граница плазменного факела становится неразличимой через 0,1 мс после появления вспышки, вызванной эмиссией монокристаллического кремния при высоких температуре и давлении. Вспышка, создаваемая плазмой при поглощении ею энергии при расширении, имеет форму дуги. При увеличении площади, занимаемой плазмой, плотность электронов и атомов уменьшается, ионное излучение и рекомбинация ослабевают. При последующем поступлении энергии от лазера часть ее представляет собой обратное тормозное излучение, поглощаемое плазмой. В отличие от лазера с плотностью энергии $W = 1981,4 \text{ Дж/см}^2$ при $W = 2736,0 \text{ Дж/см}^2$ (сильная вспышка) появляется на 0,3 мс раньше. Вследствие большой скорости расширения плазмы во вспышке появляются поверхности разрыва. Вследствие теплопроводности часть энергии продолжает действовать на поверхности монокристаллического кремния и вместе с сильным излучением плазмы на поверхности активизирует атомы кремния. При $t = 1$ мс наблюдается интенсивное свечение плазмы и происходит ее эмиссия в окружающую среду в виде линий тока. Со временем плазменный факел принимает сотовую структуру, а затем исчезает.

На рис. 3 приведены зависимости размера области, занимаемой плазмой, и скорости ее расширения от времени при воздействии лазера с плотностью энергии $W = 1582,4 \text{ Дж/см}^2$. Видно, что имеется два интервала времени, на которых скорость расширения плазмы увеличивается. При воздействии лазера скорость расширения плазмы мгновенно увеличивается, достигая максимального значения $v_{\max} = 29,2 \text{ м/с}$ при $t = 0,2$ мс. Затем скорость расширения плазмы уменьшается. При $t = 0,4$ мс скорость расширения вновь начинает увеличиваться и при $t = 0,5$ мс достигает второго максимума $v_{\max} = 18,8 \text{ м/с}$. Затем скорость расширения вновь уменьшается и при $t > 0,8$ мс это уменьшение становится практически незаметным. Плазма образуется, когда кремний поглощает большое количество энергии лазера. Скорость расширения плазмы уменьшается вследствие излучения и рассеяния энергии в окружающую среду.

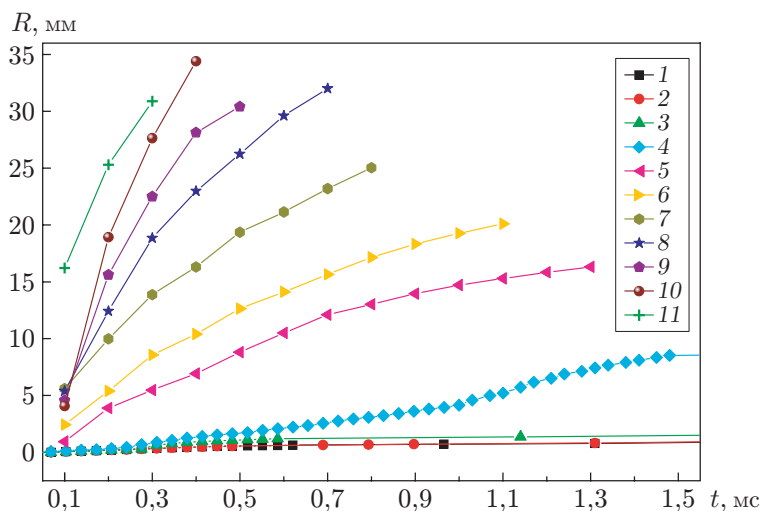


Рис. 4. Зависимость размера занимаемой плазмой области в аксиальном направлении от времени при различных значениях плотности энергии:

1 — $W = 955,4$ Дж/см², 2 — $W = 1050,9$ Дж/см², 3 — $W = 1114,6$ Дж/см², 4 — $W = 1273,9$ Дж/см², 5 — $W = 1582,4$ Дж/см², 6 — $W = 1806,4$ Дж/см², 7 — $W = 1871,3$ Дж/см², 8 — $W = 1981,4$ Дж/см², 9 — $W = 2118,9$ Дж/см², 10 — $W = 2486,4$ Дж/см², 11 — $W = 2736,0$ Дж/см²

Поскольку миллисекундный лазер воздействует в течение длительного времени, энергия лазера, поглощенная при расширении плазмы, больше энергии излучения, что способствует активации и увеличению энергии плазмы. Вследствие этого скорость расширения плазмы увеличивается вторично. Расстояние между передней границей расширяющейся плазмы и поверхностью кремния со временем увеличивается, достигая максимального значения, равного 16,1 мм.

На рис. 4 приведена зависимость размера занимаемой плазмой области в аксиальном направлении от времени. Максимальная скорость расширения плазмы имеет место в интервале $t = 0 \div 0,3$ мс, затем скорость расширения уменьшается. Таким образом, скорость расширения плазменного факела максимальна, когда он находится вблизи поверхности монокристаллического кремния. С увеличением плотности энергии лазера угол наклона кривых, приведенных на рис. 4, и скорость расширения плазмы увеличиваются. В случае если плотность энергии лазера $W < 1178,4$ Дж/см², размер занимаемой плазмой области в аксиальном направлении составляет порядка 1 мм и плазма расположена вблизи поверхности монокристаллического кремния. При плотностях энергии лазера $1582,4$ Дж/см² $< W < 2486,4$ Дж/см² размер занимаемой плазмой области в аксиальном направлении не превышает 5 мм в течение 0,1 мс с момента начала действия лазера и в дальнейшем практически не меняется. При увеличении плотности энергии лазера до значения $W = 2736,0$ Дж/см² размер занимаемой плазмой области в аксиальном направлении достигает 15 мм через 0,15 мс.

По кривым смещение — время скорость расширения плазмы v можно вычислить по формуле

$$v = \frac{dR}{dt},$$

где R — размер плазменного факела в осевом направлении; t — время.

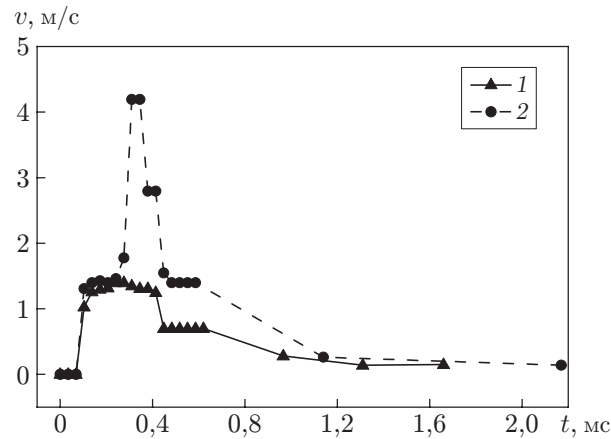


Рис. 5. Зависимость скорости расширения плазмы в осевом направлении от времени при малых значениях плотности энергии лазера:
 1 — $W = 955,4$ Дж/см², 2 — $W = 1114,6$ Дж/см²

В случае когда электроны атома находятся на поверхности кремния, поверхность сильно нагревается, вследствие чего происходит выброс материала и образуется плазма, состоящая из электронов, ионов и атомов. Когда плотность энергии лазера достигает порогового значения, приблизительно равного $955,4$ Дж/см², происходит расширение плазмы (рис. 5). Скорость расширения плазмы сначала увеличивается, затем уменьшается. Максимальная скорость не превышает 5 м/с. В начале действия лазера объемное давление в плазме выше атмосферного, вследствие чего скорость расширения быстро увеличивается. По мере действия лазера и расширения плазмы средняя длина свободного пробега частиц увеличивается, несмотря на увеличение числа частиц в плазме. Вероятность превращения внутренней энергии плазмы в кинетическую вследствие столкновения частиц уменьшается, поэтому движение внешней границы плазмы замедляется. С увеличением плотности энергии лазера скорость расширения плазмы увеличивается.

На рис. 6 приведена зависимость скорости расширения плазмы от времени при больших значениях плотности энергии лазера. Видно, что с увеличением плотности энергии лазера начальная скорость расширения плазмы увеличивается. Чем больше плотность энергии лазера, тем быстрее уменьшается скорость расширения. При плотности энергии лазера $W > 1178,3$ Дж/см² имеется два интервала времени, на которых скорость расширения плазмы увеличивается. В случае воздействия миллисекундного лазера нельзя пренебрегать влиянием поглощения капель плазмы на энергию лазера. В случае действия миллисекундного лазера при расширении плазмы происходит поглощение его энергии, что приводит к увеличению скорости расширения плазмы. По мере продвижения внешней границы плазменного факела в окружающую среду увеличиваются объем плазмы и длина свободного пробега частиц, вероятность столкновения частиц уменьшается. В то же время происходит теплообмен с окружающей средой, в результате чего плазма охлаждается и теряется ее внутренняя энергия. В результате уменьшаются кинетическая энергия плазмы и скорость ее расширения. Чем больше плотность энергии лазера, тем больше максимальная скорость расширения плазмы. При плотности энергии лазера $W = 1806,4$ Дж/см² максимальная скорость расширения равна $31,7$ м/с. При $t > 0,4$ мс скорость расширения постепенно уменьшается, при $t = 0,9$ мс $v \approx 7$ м/с и в дальнейшем практически не меняется. При плотности энергии лазера $W < 2486,4$ Дж/см² максимальная скорость расширения $v = 148,6$ м/с достигается при $t = 0,2$ мс. При плотности энергии лазера

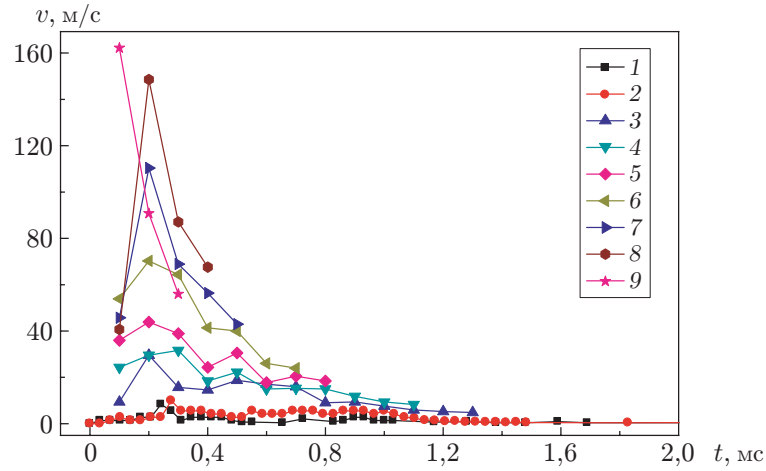


Рис. 6. Зависимость скорости расширения плазмы от времени при больших значениях плотности энергии лазера:

1 — $W = 1178,3 \text{ Дж/см}^2$, 2 — $W = 1273,9 \text{ Дж/см}^2$, 3 — $W = 1582,4 \text{ Дж/см}^2$, 4 — $W = 1806,4 \text{ Дж/см}^2$, 5 — $W = 1871,3 \text{ Дж/см}^2$, 6 — $W = 1981,3 \text{ Дж/см}^2$, 7 — $W = 2118,9 \text{ Дж/см}^2$, 8 — $W = 2486,4 \text{ Дж/см}^2$, 9 — $W = 2736,0 \text{ Дж/см}^2$

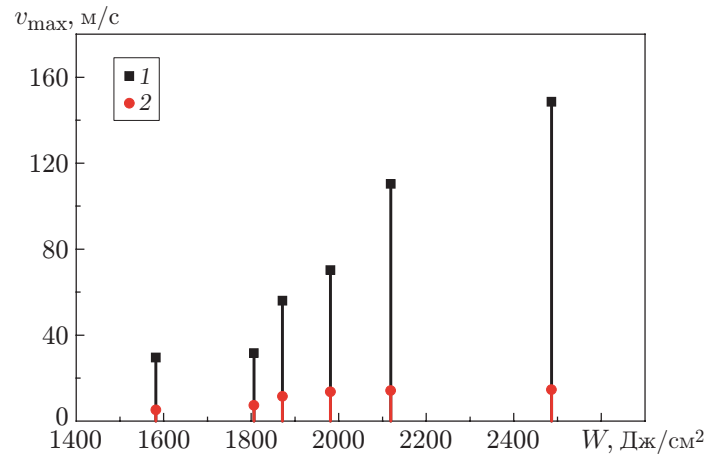


Рис. 7. Зависимость максимальной скорости расширения плазмы в осевом (1) и радиальном (2) направлениях от плотности энергии лазера

$W = 2736,0 \text{ Дж/см}^2$ максимальная скорость расширения плазмы равна $v = 162,1 \text{ м/с}$. При этом возникает волна горения.

На рис. 7 приведена зависимость максимальной скорости расширения плазмы v_{\max} от плотности энергии лазера. Большое количество частиц выбрасывается в аксиальном направлении, перпендикулярном поверхности монокристаллического кремния. Под действием лазера с высокой плотностью энергии возникает волна поглощения. Зависимость между плотностью частиц в плазменном факеле и коэффициентом поглощения, обусловленная обратным тормозным излучением, записывается в следующем виде [11]:

$$k_a = \frac{3,69 \cdot 10^8 Z^3 n_i^2}{T_i^{1/2} \gamma_0^3} \left[1 - \exp \left(- \frac{h\gamma_0}{k_B T_i} \right) \right].$$

Здесь Z — среднее число заряженных частиц; n_i — плотность тока ионного пучка; γ_0 — частота падающего луча; T_i — температура ионов; $1 - \exp(-h\gamma_0/(k_B T_i))$ — среднее значе-

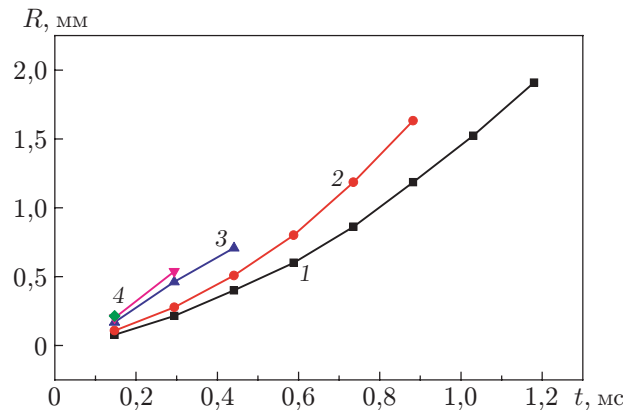


Рис. 8. Зависимость размера в радиальном направлении плазменного факела монокристаллического кремния от времени при различных значениях плотности энергии:

1 — $W = 1582,4 \text{ Дж/см}^2$, 2 — $W = 1806,4 \text{ Дж/см}^2$, 3 — $W = 1871,3 \text{ Дж/см}^2$, 4 — $W = 1981,4 \text{ Дж/см}^2$, 5 — $W = 2486,4 \text{ Дж/см}^2$

ние потери энергии вследствие вынужденного (индуцированного) излучения. В радиальном направлении, параллельном поверхности монокристаллического кремния, большинство частиц распространяется свободно (на них не действуют силы). Поэтому скорость расширения плазмы в радиальном направлении меньше, чем в осевом. Максимальная скорость расширения плазмы увеличивается с увеличением плотности энергии лазера. В случае если плотность энергии $W < 1806,4 \text{ Дж/см}^2$, скорость расширения плазмы мала ($v = 30 \text{ м/с}$). При $W = 1806,4 \div 2118,9 \text{ Дж/см}^2$ скорость расширения плазмы быстро увеличивается и равна $v = 56,1 \div 110,4 \text{ м/с}$. При дальнейшем увеличении плотности энергии лазера увеличение скорости расширения плазмы замедляется. При $W = 2736,0 \text{ Дж/см}^2$ плазменный факел поглощает существенную часть энергии лазера и скорость расширения плазмы достигает максимального значения $v_{\max} = 162,1 \text{ м/с}$. Расширение плазмы происходит с дозвуковой скоростью. Вследствие теплового излучения происходят ионизация и тепловое загрязнение окружающего воздуха, в результате чего возникает лазерная волна горения. При воздействии на монокристаллический кремний миллисекундного лазера тепловые процессы играют существенную роль. Поскольку плотность электронов в плазме достаточно мала, степень ионизации невелика и как следствие детонационная волна не возникает.

Наряду с расширением плазмы в осевом направлении происходит ее расширение в радиальном направлении. На рис. 8 приведена зависимость размера в радиальном направлении плазменного факела монокристаллического кремния от времени. Видно, что этот размер меняется со временем по экспоненциальному закону. С увеличением плотности энергии лазера увеличивается размер плазменного факела в радиальном направлении. Начальный размер плазменного факела в радиальном направлении при всех значениях плотности энергии лазера составляет приблизительно $0,25 \text{ мм}$. Размер плазменного факела в радиальном направлении меньше, чем в осевом, что обусловлено поглощением энергии лазера плазмой при ее расширении.

Заключение. В работе исследованы параметры плазменного факела, образующегося при воздействии на монокристаллический кремний миллисекундного лазера. Исследованы тепловые процессы, сопровождающие образование плазмы, а также размеры и скорость расширения плазменного факела при различных значениях плотности энергии лазера.

ЛИТЕРАТУРА

1. **Amoruso S., Bruzzese R., Spinelli N., et al.** Generation of silicon nanoparticles via femtosecond laser ablation in vacuum // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 84. P. 4502–4504.
2. **Li Y. P., Liu Z. T.** Plasma emission diagnostics for the optimization of deposition parameters in RF magnetron sputtering of GaP film // Acta Phys. Sinica. 2009. V. 58, iss. 7. P. 5022–5028.
3. **Perriere J., Boulmer-Leborgne C., Benzerga R., Tricot S.** Nanoparticle formation by femtosecond laser ablation // J. Phys. D: Appl. Phys. 2007. V. 40, N 22. P. 7069.
4. **Vorobyev A. Y., Makin V. S., Guo C. L.** Brighter light sources from black metal: significant increase in emission efficiency of incandescent light sources // Phys. Rev. Lett. 2009. V. 102, N 23. P. 234–301.
5. **Her T. H., Finlay R. J., Wu C., et al.** Microstructuring of silicon with femtosecond laser pulses // Appl. Phys. Lett. 1998. V. 73, N 12. P. 1673–1675.
6. **Chen J., Lunney J. G., Lippert T., et al.** Langmuir probe measurements and mass spectrometry of plasma plumes generated by laser ablation of La_{0,4}Ca_{0,6}Mn_{0,3} // J. Appl. Phys. 2014. V. 116, N 7. 073303.
7. **Al Khawwam A., Jama C., Goudmand P., et al.** Characterization of carbon nitride layers deposited by IR laser ablation of graphite target in a remote nitrogen plasma atmosphere: nanoparticle evidence // Thin Solid Films. 2002. V. 408. P. 15–25.
8. **Wei W. F., Li X. W., Wu J., et al.** Interferometric and schlieren characterization of the plasmas and shock wave dynamics during laser-triggered discharge in atmospheric air // Phys. Plasmas. 2014. V. 21. 083112.
9. **Nedanovska E., Nersisyan G., Morgan T. J., et al.** Comparison of the electron density measurements using Thomson scattering and emission spectroscopy for laser induced breakdown in one atmosphere of helium // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 99, N 26. 261504.
10. **Gao X., Song X. W., Tao H. Y., et al.** Optical emission spectra of Si plasma induced by femtosecond laser pulse // Acta Phys. Sinica. 2011. V. 60, N 2. 025203.
11. **Zheng Q. G.** Interaction between laser and matter / Q. G. Zheng, J. H. Fu. Wuhan: Press of Huazhong Univ. of Sci. and Technol., 1996.

*Поступила в редакцию 14/XI 2016 г.,
в окончательном варианте — 15/III 2018 г.*
