단일 펨토초 레이저펄스를 이용한 실리콘 표면에서의 시분해 반사율 측정 연구

문혜영, 시두 메라 씽, 이현규, 정세채✉
한국표준과학연구원 미래융합측정본부

Time-resolved transient reflective image on silicon surface after single-shot fs-laser pulse irradiation

Heh-Young Moon, Mehra Singh Sidhu, Hyun-Kyu Lee, Sae-Chae Jeoung
Division of Convergence Technology, Korea Research Institute of Standard and Science

Abstract

In this work, we have studied on time-resolved transient reflective image of single crystalline Si surface after single-shot fs-laser irradiation with varying the laser fluence under two different laser spot sizes. The temporal profiles of transient reflectivity changes as well as its maximum values at the early delay time were found to be strongly dependent on both the laser beam spot size and laser fluence. We have interpreted the dependence of transient reflectivity changes on the laser spot size in terms of a relaxation of the generated free carriers to the bulk silicon, which should be interacted with the plasma.

Keywords: transient reflectivity(과도반사율), femtosecond pump-probe(펨토초 펌프-프루브), time-resolved microscopy(시분해 현미경), laser ablation(레이저 어블레이션), silicon(실리콘)

1. 서 론

펨토초 레이저 펄스는 최근 다양한 분야에서의 초미세 공정에 활발하게 사용되고 있다. 특히 기존의 나노초(nanosecond) 혹은 연속파(continuous wave) 레이저와 비교하여 열적-기계적인 손상의 영역을 매우 제한적으로 야기함으로 다양한 재료의 초정밀 공정뿐만 아니라 살아있는 세포의 세포막 및 내부 미시적인 구조까지 매우 선택적으로 제어할 수 있는 새로운 수단을 제공한다.[1-2] 이러한 이유로 최근에 극초단 펄스 레이저를 이용한 기초 생물학적 연구의 새로운 도구로 떠오르고 있다. 또한 인체 조직에 대하여 초단파, 적외선 레이저 광 펄스를 이용하여 높은 피크(peak)의 광도로 초점을 맞추어 서브마이크론(submicron) 정도의 정밀도로 절제가 가능하게 하였다. 또한, 기초 생물학적인 분야뿐만 아니라 살아있는 쥐의 뇌 속의 혈관에 섬세한 레이저 처리 등 매우 폭넓게 활용되고 있다.[3]

투고일 : 2011년 8월 09일 심사완료일 : 2011년 10월 23일
게재승인일 : 2011년 12월 23일
교신저자 : 정세채 ✉ scjeoung@kriss.re.kr

이상과 같이 펨토초 레이저를 이용한 연구가 많은 분야에서 활발하게 진행되고 있는 반면, 매우 높은 고 출력을 갖는 초고속레이저가 물질에 집속(focusing)될 경우, 선형 및 비선형 흡수와 같은 복잡한 광학 현상을 이해하기 위한 기초적인 연구는 아직도 미흡한 실정이다. 예를 들면, 펨토초 레이저 펄스와 물질과의 상호작용(fs laser-matter interaction)에 있어, 물질의 비선형 광학 특성 중 하나인 다광자 흡수(multi-photon absorption)에 의한 흡수 단면적 효과를 무시할 수 없다. 즉, 선형 광 흡수가 거의 없는 투명한 물체에서도 초고속 레이저와 적절한 집속 광학계를 구성함으로써 충분한 밀도의 전자 및 이온들을 생성 시킬 수 있다. 특히 물질 내부 혹은 표면에 초고속 레이저를 집속-조사하여 임계 밀도(critical density) 이상의 플라즈마 유사 상태를 유발하는 경우, 매우 국부적으로 대상 물질에 영구적인 손상을 가할 수 있다.

높은 에너지의 초고속 레이저 조사 후에 물질에서 일어나는 매우 빠른 동력학에 대한 많은 연구가 활발히 진행되어 왔다.[4-11] 이를 연구하기 위해 시분해 반사율측정, 투과율측정 및 표면에서

의 이차 조화파 생성과 시분해 ellipsometric 측정 등 다양한 광학적인 방법들을 적용한 결과들이 이미 발표되었다. 이를 통하여 1022cm^{-3} 정도의 매우 높은 밀도를 갖는 자유여기자(free carrier)들이 ablation과 같은 비 평형적인 동력학에 매우 중요한 역할을 하는 것으로 알려졌다. 특히, 펨토초 레이저를 이용하여 생성된 높은 밀도의 free carrier들은 일반적으로 주위 lattice와 열적 평형 상태에 이르기 전에 비평형적으로 물질의 상태를 변화 시킨다고 알려져 있다.[10-11,13-15] 최근에는 시분해 X-ray diffraction을 이용하여 직접적으로 material의 phase transition을 관찰하여 보고 한 바도 있다.[5,7,9,14-18]

본 연구에서는 단일 펨토초 레이저 펄스를 이용하여 실리콘 표면에서의 플라즈마의 생성 및 소멸 현상을 관찰하기 위하여, 높은 시간 및 공간 분해능(time- and spatial-resolved)을 갖는 측정 방법을 개발하였다. 단일 펨토초 레이저 펄스에 의한 물질 내 플라즈마 생성에 관한 연구를 위하여 두 개의 다른 기계적인 셔터를 이용하는 방법을 채택하였다. 또한 10kHz의 frame-rate을 갖는 고속 카메라를 이용하여 단일펄스 하에서 일어나는 플라즈마의 거동에 관한 결과를 얻을 수 있었다. 이러한 실험장치를 이용하여 실리콘 표면에 레이저가 조사되는 spot size를 달리하며 얻어진 과도반사율(transient reflectivity) 및 단일 펨토초 레이저 펄스(single-shot femtosecond laser pulse)에 의하여 발생한 crater를 AFM(atomic force microscopy)을 이용하여 조사하였다.

2. 실험방법

Fig. 1은 본 연구에서 사용한 실험 장치의 모식도이다. 표면이 연마된 700㎛ 두께를 갖는 단결정 실리콘 웨이퍼를 실험에 사용하였다. 이 단결정 실리콘 웨이퍼를 미러 마운트(mirror mount)에 부착시킨 후 이를 XYZ 3축의 이송장치를 이용하여 손상되지 않은 표면에 단일 펄스레이저를 조사하였다. 실험 후 실리콘 표면의 crater는 AFM(Agilent)을 이용하여 topography를 측정하고 이를 분석하였다.

본 실험에 사용한 레이저는 증폭된 Ti:Sapphire 레이저(Coherent, USA)로써 펄스당 에너지는 1μJ이며 펄스 폭은 150-fs 이고 펄스 반복률은 1kHz이다. 레이저 빔은 60:40 광 분할기(beam splitter)를 이용하여 두 beam으로 나누었다. 그 중 한 빔은 비

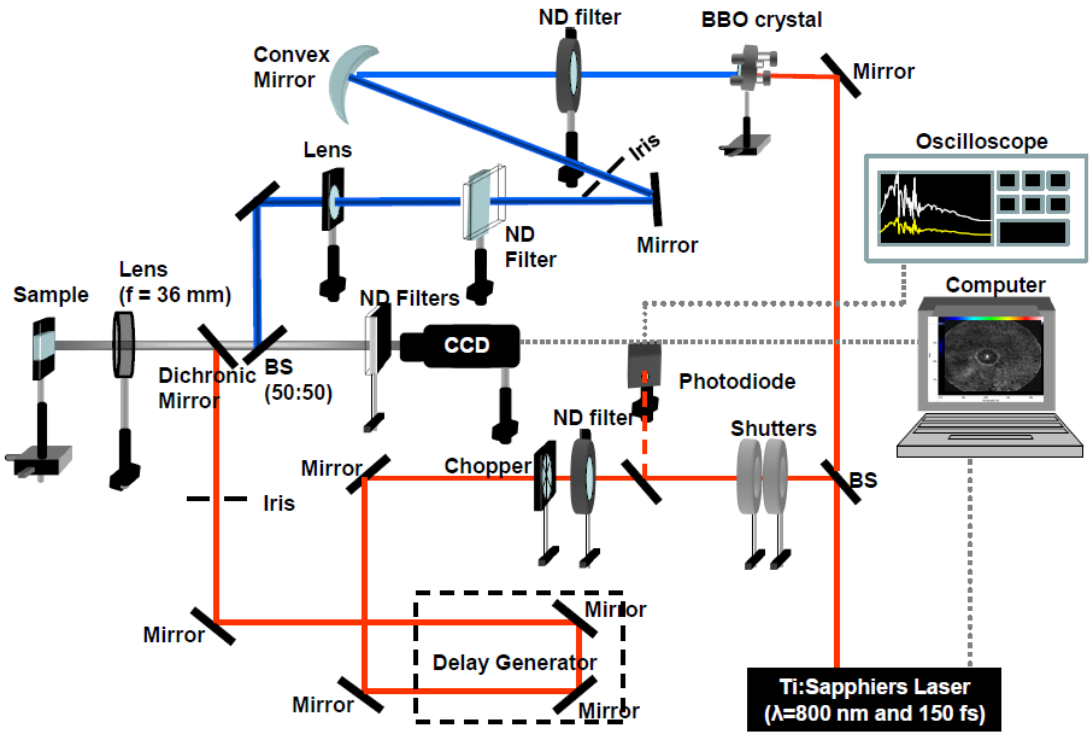

Fig. 1 Measurement setup for the transient reflection. The pump and image beam was irradiated on the silicon surface, of which arrival time could be controlled by delay generator.

선형광학 소자에 집속시킴으로써 2차 조화파를 발생하도록 하였으며 이를 탐침 광원(pump beam)으로 사용하였다. 나머지 한 빔은 실리콘 표면에 변화를 유발하는 광원으로 사용하였다. 두 레이저 빔간의 상대적인 샘플 표면 도달 시간은 translator를 이용하여 조절하였다. 펌프 빔과 탐침 빔 은 동일한 렌즈를 이용하여 샘플에 수직하게 조사하였고 각각의 레이저의 polarization은 서로 수직이 되도록 하였다. 한편 1kHz의 반복률을 갖는 레이저 펄스 열로부터 단일 펄스는 다음과 같이 반응 시간상수가 0.6ms인 두개의 기계적인 셔터를 이용하여 추출하였다. 즉, 레이저 증폭기로부터의 레이저 펄스와 동기화된 신호 및 전기 스위치의 신호를 자체 제작한 전기적인 AND gate에 신호 선으로 사용함으로써 레이저 펄스와 동기화된 0.5ms의 폭을 갖는 전기적인 펄스를 만들었다. 이 신호는 다시 다중 channel을 갖는 전기신호 지연기(DG645, SRS, USA)에 트리거 신호로 사용하여 각기 다른 지연시간을 갖는 2개의 전기적인 펄스를 만들었다. 이 두 다른 전기적인 신호 중 하나는 항상 ‘open’ 되어있는 셔터에 ‘close’ 신호로 사용하였고 다른 신호는 항상 ‘close’ 상태의 기계적인 셔터에 ‘open’ 신호로 활용하였다. 이 두 신호간의 지연시간을 0.5ms 이내에 있게 함으로써 두 셔터 모두 ‘on’ 된 상태가 레이저 펄스의 반복시간에 비교하여 짧게 함으로써 단일 펄스만을 추출할 수 있었다. 샘플 표면에서의 광원에 의한 반사율 변화는 레이저와 전기적으로 동기화된 high-speed charge-coupled device(CCD, FASTCAM, Photron, Japan)을 이용하여 모니터링 하였다. 이때 펌프 레이저 및 레이저 유발 plume에 의하여 발생하는 빛은 탐침 빔의 파장에 해당하는 400nm 중심 파장의 band-pass 광학 필터를 이용하여 제거하였다. 이러한 광학적인 filtering을 이용하여 여기 빔만 존재하는 경우 혹은 Fig. 2의 negative time delay에서 측정된 이미지에서는 이상의 광학적인 간섭이 없음을 확인하였다. 측정된 동영상은 자체 제작한 Labview 프로그램을 이용하여 얻어진 이미지의 중앙에 밝게 빛나는 부분의 하나의 pixel에서의 세기를 측정함으로써 반사율의 변화를 정량적으로 측정하였다. (Fig. 2의 화살표 표시 부분 참조)

3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 레이저 에너지 밀도가 10μJ이고 레이저 beam spot size가 5.6㎛인 경우 레이저 펌프 펄스(pump pulse)와 탐침 펄스(probe pulse)간의 지연시간을 달리하면서 측정된 실리콘 표면에서의 반사에 의한 이미지를 보여주고 있다. 탐침 펄스가 조사 펄스보다 먼저 온 경우 (negative time delay)와 두 펄스가 시간적으로 일치하는 경우는 실리콘 표면의 반사 이미지가 크게 변하지 않는다. 그러나, 탐침 펄스가 약 1.2ps 이후에 실리콘 표면에 도달하는 경우는, 레이저가 조사된 표면의 중심에 매우 밝게 탐침 빔이 반사하는 현상을 관찰 할 수 있었다. 이는 이미 보고된 바와 같이, 펌프 빔에 의하여 발생한 자유 여기자들은 높은 밀도의 plasma를 형성하고 이 plasma는 반사율 증가의 원인으로 설명이 가능하다.[10-13] 두 펄스간의 시간적인 지연시간이 점점 커짐에 따라 발생된 plasma의 밀도는 비 평형적인 물질 제거 반응 및 자유 여기자와 주위에 있는 원자들과의 상호 작용에 의해 감소하게 되고, 반사율이 작아지는 현상을 확인할 수 있다. Fig. 3은 이렇게 얻어진 이미지와 함께 레이저 에너지 밀도를 변화하면서 측정된 반사율의 시간적인 변화를 보여준다. 즉, 레이저 에너지 밀도가 작은 경우 반사율 변화의 감소에 대한 시간 상수는 대략 수십 ps로써 비교적 느린 반면, 에너지가 높아짐에 따라 수 ps의 시간 상수를 갖는 빠른 이완 현상이 기존의

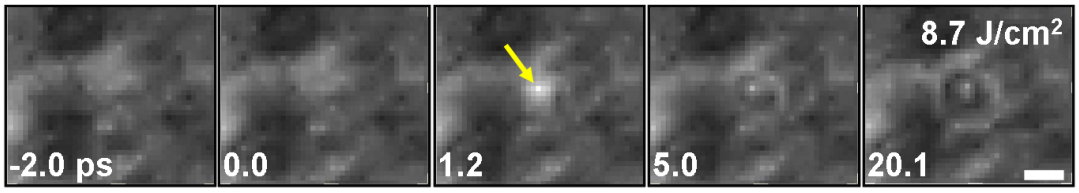

Fig. 2 The time-resolved reflectivity image in single-crystalline silicon at the energy of 10μJ and the beam spot size of 5.6㎛. The signal intensity from the pixel indicated by yellow arrow is used to determine the reflectance changes The pixel indicated by arrow The scale bar is 20㎛.

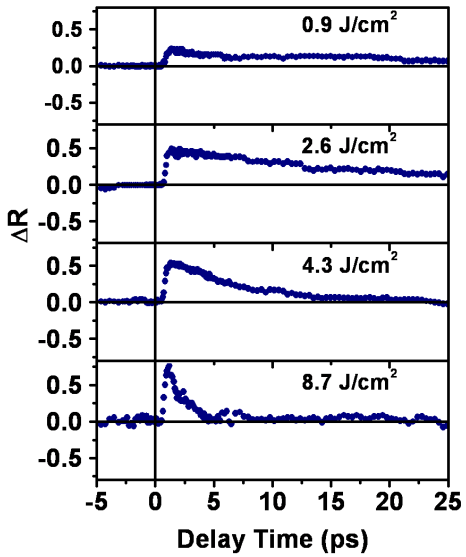

Fig. 3 Temporal profile of the surface reflectivity changes in single-crystalline silicon as a function of laser fluence with a beam spot size of 5.6㎛.

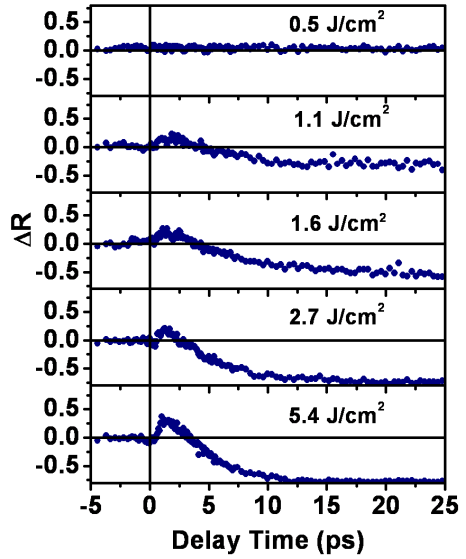

Fig. 4 Temporal profile of the surface reflectivity in single-crystalline silicon as a function of laser fluence with a beam spot size in diameter of 7.1㎛

느린 변화와 함께 관찰되었다. 특히 이러한 빠른 이완 현상은 반사율 증가로 이해되는 plasma의 최초 형성 밀도와 매우 밀접한 상호관계가 있다고 보여진다.

레이저 빔 크기가 plasma의 밀도의 변화에 주는 효과를 관찰하기 위하여 레이저 빔 지름이 7.1㎛인 경우에 동일한 시간 분해 반사율변화 측정 실험 또한 수행하였다. Fig. 4는 레이저 빔

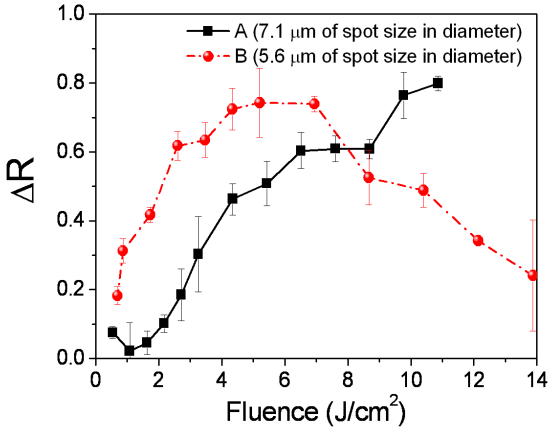

Fig. 5 The surface reflectivity of single-crystalline silicon as a function of laser fluence. The beam spot size in diameter is 7.1 (A: black filled square) and 5.6㎛ (B : red filled circles).

크기가 7.1㎛인 경우에 레이저 에너지 밀도를 변화 시키면서 측정된 반사율의 시간적인 변화를 보여 주고 있다. 그림에서 보여 진 바와 같이, 레이저 빔 크기가 큰 경우 반사율의 시간적인 변화가 레이저 에너지 밀도에 매우 민감한 것을 관찰할 수 있었다. 즉, 레이저 에너지 밀도가 커짐에 따라 plasma에 의한 반사율 변화가 매우 빠르게 감소하였다. 동일한 레이저 에너지 밀도인 경우에 plasma에 의한 반사율이 레이저 빔 크기에 매우 강하게 의존함은 주목 할 만하다. 이는 기존의 다른 연구 보고에서는 관찰하지 못한 결과이다. 이상의 결과를 좀 더 자세히 알아보기 위하여 본 연구에서는 펌프 광과 탐침 광과의 지연시간을 최대 반사율이 되는 영역에서 고정시키고 레이저 에너지 밀도를 변화하면서 반사율의 변이를 측정하였다. 측정 결과를 Fig. 5에 나타내었으며, 이때 관찰된 crater의 AFM 이미지 또한 Fig. 6에 보여주고 있다. Fig. 7은 AFM으로부터 얻어진 이미지를 이용하여 측정된 레이저 에너지 밀도에 대한 crater 깊이의 의존성을 보여 주었다. 레이저 에너지 밀도가 동일 할 경우에는, 레이저 빔 크기에 상관 없이 ablation depth는 레이저 에너지 밀도에 대해서 동일한 의존성을 보여주었다. 반면, Fig. 5에서 보여진 바와 같이, 레이저 빔 중심에서 관찰된 plasma의 밀도는 매우 상이한 의존성을 보여주고 있다. 즉, 비교적 큰 레이저 빔의 경우에 레이저 에너지 밀도가 증가함에 따라 plasma에 의한 반사율의 최대치 또한 점차

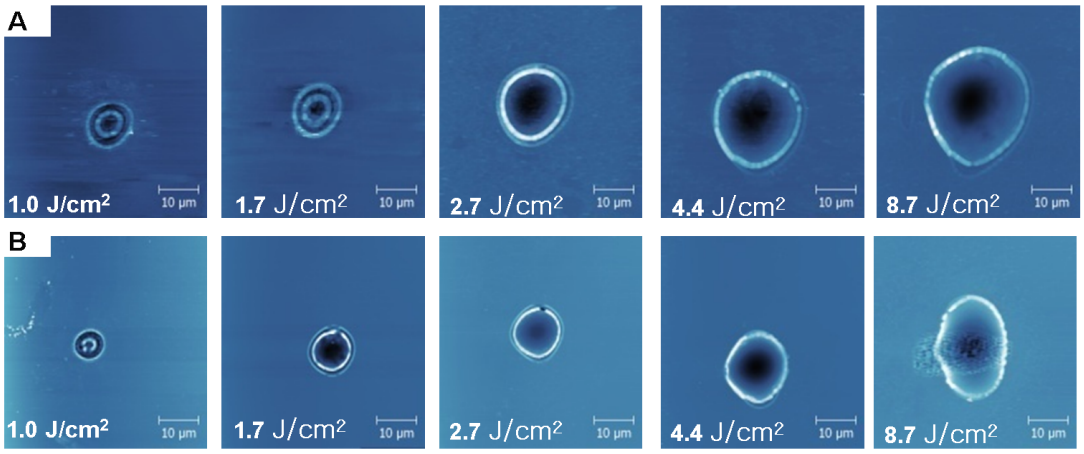

Fig. 6 AFM images for craters after single-shot irradiation at different laser fluences. The beam spot size in diameter is 7.1㎛ (A) and 5.6㎛ (B).

강해졌다. 반면, 레이저 빔 크기가 상대적으로 작아진 경우에는 낮은 레이저 에너지 밀도에서 반사율이 선형적으로 의존하다가 대략 3J/cm^{2}에서 최대치에 이르렀다 (Fig. 5). 이후, 레이저 에너지 밀도를 계속 증가 시키는 경우 레이저에 의하여 생성된 plasma 반사율이 감소하는 현상을 확인할 수 있었다.

본 연구에서 관찰된 plasma 반사율의 레이저 빔 크기에 대한 의존성은 특히 재미있는 측정 결과라고 판단된다. 지금까지의 데이터를 바탕으로 그 이상의 흥미로운 결과를 해석할 수 있는 결정적인 증거는 부족하지만 다음과 같은 가설을 제안할 수 있다. 즉, 레이저 빔 크기가 큰 경우는 작은 경우에 비하여, 동일한 레이저 에너지 밀도에서 레이저에 의하여 생성된 plasma들이 3차원적으로 넓은 공간에 분포하다가 주위에 여기 되지 않은 실리콘 bulk 상태와 접촉할 것이다. 그러므로, 레이저 빔 크기가 커짐에 따라 지연 시간 상수(decay time constant) 또한 커지게 될 것이다. 이러한 가설은 동일한 레이저 에너지 밀도 하에서 반사율의 감소 속도가 레이저 빔 spot size가 5.6mm에서 7.1mm로 증가함에 따라 빨라지는 것을 관찰한 결과 (Fig. 3, 4 참조) 결과와도 잘 일치함을 알 수 있었다. 한편, 반사율이 최대치가 되는 지연 시간(delay time)에서 관찰된 반사율 변화와 레이저 에너지 밀도 사이의 의존성은 두 개의 다른 동력학적인 현상이 경쟁하고 있는 것으로 설명할 수 있다. 즉, 레이저 조사에 의하여 발생된 높은 밀도의 여기자 및 이에 의한

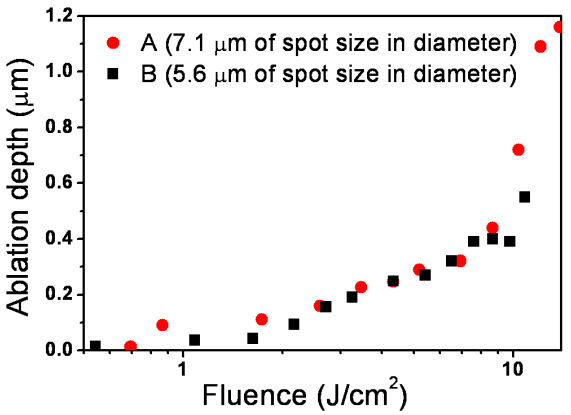

Fig. 7 The ablation depth profile from the cross- sectional profile of single-crystalline silicon as a function of laser fluence. The beam spot size in diameter is 7.1㎛ (A: black filled square) and 5.6 ㎛ (B : red filled circles).

plasma 밀도는 여기자 간 혹은 주위 silicon의 원자들과의 상호작용에 의하여 감소하게 된다. 레이저 빔 크기가 큰 경우에는 상대적으로 빠른 이완(relaxation) 작용으로 인하여, 레이저 펄스 폭 안에서도 레이저 조사에 의하여 여기된 전자 밀도가 빠르게 감소하여 레이저 에너지 밀도가 매우 높을 경우에 최대치의 전자 밀도(1022cm^{-3})에 도달하는 것으로 예측된다. 반면, 레이저 빔 사이즈가 비교적 작은 경우에는 여기된 전자와 이에 의하여 유발된 plasma 밀도의 감소는 상대적으로 느린 이완 시간 상수를 가질 것으로 예측된다. 따라서 실리콘 결정에서 가질 수 있는 최대치의 전자 밀도가 비교적 낮은 레이저 에너지 밀도에서 나타날 것이고, 그 이상 레이저 에너지 밀도

증가 시에 레이저 빔에 의하여 야기된 다양한 형태의 레이저 유발 비 평형적인 물질의 상태 변이를 초래하게 된다. 그 결과 최대치의 반사율 변화량이 점점 감소할 것으로 기대된다.

4. 결 론

본 연구에서는 펨토초 레이저 시간 분해능 및 수 마이크로미터의 공간 분해능을 갖는 과도 반사율 장치를 개발하고 이를 이용하여 실리콘 표면에서 발생하는 초고속 레이저 유발 비 평형적인 물질의 상태 변이를 연구하였다. 특히 과도 반사율 변화량의 시간적 변이와 그 최대치는 레이저 빔 크기와 매우 밀접한 관계가 있음을 실험적으로 확인하였다. 이는 기존의 유사한 연구에서는 아직 발표되지 않은 결과로 관련 분야에서 매우 흥미로운 관찰이며, 이에 대해 좀 더 심도 있는 연구가 진행 중에 있다.

참고문헌

1) S.C. Jeoung, M. S. Sidhu, J. S. Yang, H. J. Shin and G. Y. Baik, “Advances in lasers and Electro optics”, INTECH Pub., Croatia, 2010.
2) S.H. Chung and E. Mazur, “Femtosecond laser ablation neurons in C. elegans for behavioral studies”, Applied Physics A: Materials Science & Processing, Vol. 96, No. 2, pp. 335-341, 2009.
3) N. Nishimura, B. Schaffer, B Friedman, P. S. Tsaim P. D. Lyden and D. Kleinfeld, Nature Methods, “Targeted insult to subsurface cortical blood vessels using ultrashort laser pulses: three models of stroke”, Nature Methods, Vol. 3, No. 2, pp. 99-108, 2006.
4) I. B. Khaibullin, E. I. Shtyrkov, M. M. Zaripov, R. M. Bayazitov, and M. F. Galjautdinov, “Some features of laser annealing of implanted silicon layers”, Radiation Effects, Vol. 36, No. 3-4, pp. 225-233, 1978.
5) C. V. Shank, R. Yen, and C. Hirlimann, “Femtosecond-time-resolved surface structural dynamics of optically excited silicon”, Physical Review Letter, Vol. 51, No. 10, pp. 900-902, 1983.
6) Y. Siegal, E. N. Glezer, and E. Mazur, “Dielectric constant of GaAs during a subpicosecond laser-induced phase transition”, Physical Review B, Vol. 49, Issue 23, pp. 16403-16406, 1994.
7) K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, and D. von der Linde, “Ultrafast laser-induced order-disorder transitions in semiconductors”, Physical Review B, Vol. 51, Issue 20, pp. 14186-14198, 1995.
8) Y. Siegal, E. N. Glezer, L. Huang, and E. Mazur, “Laser-induced phase transitions in semiconductors”, Annual Review of Materials Science, Vol. 25, pp. 223-247, 1995.
9) K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, M. Boing, A. Cavalleri, and D. von der Linde, “Thermal and nonthermal melting of gallium arsenide after femtosecond laser excitation”, Physical Review B, Vol. 58, Issue 18, pp R11805-R11808, 1998.
10) A. Rousse, C. Rischel, S. Fourmaux, I. Uschmann, S. Sebban, G. Grillon, P. Balcou, E. Forster, J. P. Geindre, P. Audebert, J. C. Gauthier, and D. Hulin, “Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution”, Nature, Vol. 410, pp. 65-68, 2001.
11) T. Ao, Y. Ping, K. Widmann, D. F. Price, E. Lee, H. Tam, P. T. Springer, and A. Ng, “Optical properties in nonequilibrium phase transitions”, Physical Review Letters, Vol. 96, Issue 5, pp. 055001, 2006.
12) S. K. Sundaram and E. Mazur, “Inducing and probing non-thermal transitions in semiconductors using femtosecond laser pulses”, Nature Materials, Vol. 1, pp. 217-224, 2002.
13) D. Puerto, J. Siegel, W. Gawelda, M. Galvan-Sosa, L. Ehrentraut, J. Bonse, and J. Solis, “Dynamics of plasma formation, relaxation, and topography modification induced by femtosecond laser pulses in crystalline and amorphous dielectrics”, Joruanl of the Optical Society of America B, Vol. 27, Issue 5, pp 1065-1076, 2010.

14) C. W. Siders, A. Cavalleri, K. Sokolowski-Tinten, C. Toth, T. Guo, M. Kammler, M. H. v. Hoegen, K. R. Wilson, D. v. d. Linde, and C. P. J. Barty, “Detection of Nonthermal Melting by Ultrafast X-ray Diffraction”, Science, Vol. 286, No. 5443, pp. 1340-1342, 1999.
15) K. Sokolowski-Tinten, J. Solis, J. Bialkowski, J. Siegel, C. N. Afonso, and D. von der Linde, “Dynamics of ultrafast phase changes in amorphous GeSb films”, Physical Review Letters, Vol. 81, Issue 17, pp. 3679-3682, 1998.
16) S. A. Akhmanov, N. I. Koroteev, and I. L. Shumay, “Nonlinear Optical Diagnostics of Laser-Excited Semiconductor Surfaces, Laser Science and Technology”, Vol. 2, Harwood, Chur, Switzerland, 1989.
17) A. Cavalleri, C. W. Siders, C. Rose-Petruck, R. Jimenez, oacute, C. th, J. A. Squier, C. P. J. Barty, K. R. Wilson, K. Sokolowski-Tinten, M. Horn von Hoegen, and D. von der Linde, “Ultrafast x-ray measurement of laser heating in semiconductors: Parameters determining the melting threshold”, Physical Review B, Vol. 63, Issue 19, pp. 193306-4, 2001.
18) C. Rose-Petruck, R. Jimenez, T. Guo, A. Cavalleri, C. W. Siders, F. Rksi, J. A. Squier, B. C. Walker, K. R. Wilson, and C. P. J. Barty, “Picosecond-milliangstrom lattice dynamics measured by ultrafast X-ray diffraction”, Nature, Vol. 398, pp. 310-312, 1999.