

НЕЛИНЕЙНЫЙ РЕЖИМ ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННОЙ ГЕНЕРАЦИИ ПОВЕРХНОСТНЫХ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ВОЛН И СУБМИКРОННОГО ПЕРИОДИЧЕСКОГО РЕЛЬЕФА ПРИ ЖИДКОФАЗНОМ ФОТОХИМИЧЕСКОМ ТРАВЛЕНИИ ПОЛУПРОВОДНИКОВ n -A^{III}B^V

В. Н. Семиногов, В. Я. Панченко, А. И. Худобенко

Научно-исследовательский центр по технологическим лазерам Российской академии наук
142092, Троицк, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 7 мая 1996 г.

Работа посвящена экспериментальному исследованию физических процессов, лежащих в основе явления лазерно-индуцированной генерации периодического рельефа на поверхности полупроводников n -A^{III}B^V при жидкофазном фотохимическом или фотоэлектрохимическом травлении в условиях резонансного возбуждения поверхностных электромагнитных волн (ПЭВ). Измерены инкременты экспоненциального во времени нарастания амплитуд доминирующих фурье-гармоник рельефа на начальной (линейной) стадии временной эволюции поверхностного профиля. Путем сравнения теоретических и экспериментальных результатов доказана адекватность предложенного нами механизма образования периодических структур. Изучены пути монохроматизации генерируемого рельефа и управления формой штриха поверхностной решетки. Впервые экспериментально обнаружено, что нелинейная стадия временной эволюции рельефа характеризуется, в соответствии с предсказаниями развитой авторами теории, осцилляциями амплитуд и фаз первой и второй фурье-гармоник поверхностного профиля. Показана возможность генерации такого рельефа, на котором проявляется эффект подавления зеркального отражения от поверхности. Развита новая безмасочный лазерный метод формирования субмикронных рельефных дифракционных решеток высокого качества, который является комбинацией голографического метода и метода лазерно-индуцированной генерации рельефа при резонансном возбуждении ПЭВ. На поверхности n -InP созданы дифракционные решетки с периодом $d = 0.24$ – 0.54 мкм, глубиной $h = 0.1$ – 0.2 мкм на площади 0.5×1 см².

1. ВВЕДЕНИЕ

Рельефные дифракционные решетки находят широкое применение в научно-исследовательской практике, интегральной оптике, в области волоконно-оптической связи. На базе дифракционных решеток созданы системы для ввода и вывода излучения из планарных и волоконных оптических волноводов [1–6], полупроводниковые и волоконные лазеры с распределенной обратной связью и с распределенными брэгговскими зеркалами [1, 7–11], оптические фильтры [1, 12, 13], ответвители и равномошностные делители лазерных пучков, в том числе и для синхронизации излучения многоканальных лазеров [14, 15], высокоэффективные преобразователи поляризации лазерного излучения для технологических комплексов по лазерной резке металлов [16, 17], селективные детекторы и фотодиоды [18–21] и др. В настоящее время имеется несколько методов фабрикации рельефных дифракционных решеток на поверхности полупроводников: электронно- и ионно-лучевая литография, фотолитографический способ и др. Эти методы предполагают использование маски и потому являются сложными, многоступенчатыми. В отличие от этого традиционный метод изготовления решеток лазер-

ным голографическим травлением полупроводников является безмасочным. Формирование периодического рельефа на поверхности полупроводника осуществляется благодаря прямому пространственно-неоднородному фотохимическому или фотоэлектрохимическому травлению (см. разд. 2), обусловленному интерференционным распределением интенсивности, создаваемым сведением двух лазерных пучков на поверхности подложки. Одним из главных недостатков метода является высокая чувствительность к вибрациям оптических элементов.

Помимо голографического метода существует другой способ безмасочного формирования поверхностного периодического рельефа под действием одного лазерного пучка. Периодически-неоднородное распределение интенсивности на поверхности образца возникает благодаря лазерно-индуцированной генерации поверхностных электромагнитных волн (ЛИГ ПЭВ) и интерференции этих волн с падающей волной. Явление образования периодических структур при ЛИГ ПЭВ носит довольно универсальный характер. Оно наблюдалось при лазерно-стимулированном пиролитическом травлении и осаждении пленок (см. обзор [22] и ссылки там), при лазерной генерации акустических волн на поверхности твердых тел, при лазерном плавлении и испарении металлов, полупроводников, диэлектриков (см. обзоры [23] и ссылки там). При помощи теоретических и экспериментальных исследований [22, 24–27] было показано, что вынужденная генерация рельефных решеток при ЛИГ ПЭВ возможна и при жидкофазном травлении полупроводников $n\text{-A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$. (В обзорах [22, 23] отражены в основном исследования, касающиеся линейной (начальной) стадии формирования рельефа. В статье [26] дан исчерпывающий перечень работ по изучению нелинейной стадии, которая характеризуется взаимодействием генерируемых гармоник между собой.) Следует отметить, что метод ЛИГ ПЭВ нечувствителен к вибрациям. Тем не менее нам неизвестны работы, где этим методом были бы изготовлены дифракционные решетки, сравнимые по качеству с решетками, сформированными голографическим методом.

Настоящая работа посвящена экспериментальному исследованию физических процессов, лежащих в основе предлагаемого нами нового безмасочного метода лазерно-стимулированного формирования субмикронных рельефных дифракционных решеток высокого качества на поверхности полупроводников $n\text{-InP}$, $n\text{-GaAs}$ в процессе жидкофазного фотохимического или фотоэлектрохимического травления. Этот метод (модифицированный метод ЛИГ ПЭВ) является комбинацией голографического метода и метода ЛИГ ПЭВ и сочетает достоинства обоих методов. Для обоснования метода нами изучена как линейная, так нелинейная стадия временной эволюции рельефа при ЛИГ ПЭВ.

В разд. 2 изложен механизм фотохимического травления полупроводников $n\text{-A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$. В разд. 3 изучены особенности процесса формирования рельефных решеток на поверхности $n\text{-InP}$, $n\text{-GaAs}$ голографическим методом. Исследовано влияние поляризации лазерных пучков на глубину высококачественных решеток. Сформулированы основные достоинства и недостатки голографического метода.

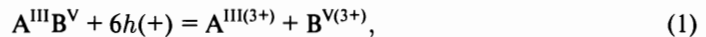
Разд. 4 посвящен экспериментальному исследованию временной эволюции поверхностного периодического рельефа, формируемого под действием одного лазерного пучка методом ЛИГ ПЭВ. В разд. 4.1–4.3 приведены физический механизм возникновения положительной обратной связи ЛИГ ПЭВ при фотохимическом травлении и основные теоретические результаты работ [22, 25, 26] по линейному и нелинейному режимам временной эволюции поверхностного рельефа. В разд. 4.4 приведены результаты впервые выполненных нами измерений инкрементов экспоненциального во времени нараста-

ния фурье-амплитуд доминирующих решеток на линейной (начальной) стадии. Путем сравнения экспериментальных и расчетных значений инкрементов доказана справедливость развитой в работах [22, 25] теории. Изучены возможности монохроматизации рельефа. Дана экспериментальная оценка качества дифракционных решеток, выявлены достоинства и недостатки метода ЛИГ ПЭВ.

В разд. 5 изложены основные идеи модифицированного метода ЛИГ ПЭВ, ведущие к существенной монохроматизации генерируемого рельефа. Впервые экспериментально исследована временная динамика формирования рельефа при ЛИГ ПЭВ на нелинейной стадии. Показано, что в соответствии с теоретическими предсказаниями (см. [26] и ссылки там) временная эволюция фурье-амплитуд поверхностного рельефа носит осцилляционный характер и сопровождается проявлением лазерно-стимулированного эффекта подавления зеркального отражения. Изучены возможности управления формой поверхностного профиля генерируемого рельефа. В частности показано, что модифицированным методом ЛИГ ПЭВ возможно формировать дифракционные решетки высокого качества не только с симметричным, как в случае голографического травления, но и с асимметричным профилем штриха.

2. ФИЗИЧЕСКИЙ МЕХАНИЗМ ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННОГО ИЗМЕНЕНИЯ СКОРОСТИ ЖИДКОФАЗНОГО ТРАВЛЕНИЯ ПОЛУПРОВОДНИКОВ n - $A^{III}B^V$

Хорошо известно, что травление полупроводников типа n - $A^{III}B^V$ инициируется благодаря образованию ионов $A^{III(3+)}$ и $B^{V(3+)}$ в соответствии со схемой [28, 29]



где символом $h(+)$ обозначается дырка. Последующая химическая реакция положительно заряженных ионов полупроводника с отрицательно заряженными ионами электролита ведет к окислению и последующему травлению поверхности. В процессе «темнового» травления без приложения внешнего электрического потенциала к образцу каждая точка поверхности полупроводника является попеременно катодом или анодом электрохимической реакции. Это означает, что процесс окисления материала и процесс восстановления компонент травителя протекает одновременно в любой точке поверхности.

Пусть теперь на поверхность полупроводника, погруженного в травитель, падает лазерное излучение, энергия кванта которого больше ширины запрещенной зоны этого материала. В случае полупроводника n -типа границы зон у поверхности изогнуты вверх, как показано на рис. 1. Благодаря этому лазерно-индуцированные дырки притягиваются к поверхности, в то время как фотоиндуцированные электроны отталкиваются от поверхности полупроводника. В результате освещенная область становится положительно заряженной по отношению к неосвещенным точкам поверхности. При этом, в соответствии с выражением (1), скорость травления в освещенной области повышается. Таким образом, можно записать

$$\nu_0 = \nu_L - \nu_D = \beta n(x) = \alpha I_L(x), \quad (2)$$

где ν_L , ν_D — скорости травления соответственно в освещенной и неосвещенной точках поверхности, ν_0 — лазерно-индуцированное изменение скорости травления, $I_L(x)$,

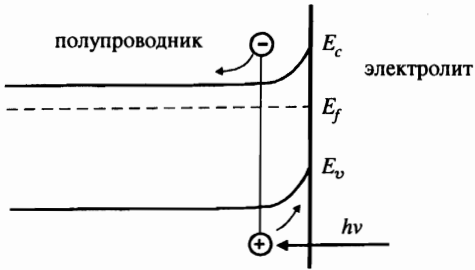


Рис. 1. Схема, иллюстрирующая изгиб валентной зоны и зоны проводимости вблизи границы раздела «полупроводник n -типа — травитель», E_f — уровень Ферми. Стрелками показано разделение фотогенерируемых электрон-дырочных пар

$n(x)$ — распределения интенсивности света и концентрации дырок на поверхности, α, β — константы.

Из выражения (2) следует, что благодаря фотохимическому травлению возможно формирование рельефа с заданным профилем на поверхности полупроводника, если создать тем или иным способом соответствующее пространственно-неоднородное распределение интенсивности на поверхности.

3. ОСОБЕННОСТИ ФОРМИРОВАНИЯ РЕЛЬЕФНЫХ ДИФРАКЦИОННЫХ РЕШЕТОК НА ПОВЕРХНОСТИ n -InP ГОЛОГРАФИЧЕСКИМ МЕТОДОМ

Традиционным безмасочным методом формирования периодического рельефа является голографический метод, в котором реализуется интерференция двух лазерных пучков для создания периодического распределения интенсивности на поверхности образца. Эксперименты по лазерному формированию дифракционных решеток были выполнены нами на образцах n -InP ($n \approx 5 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$) с использованием травителя $\text{HCl}:\text{HNO}_3:\text{H}_2\text{O} = 4:1:70$. Схема экспериментальной установки приведена на рис. 2. Все оборудование монтировалось на голографическом столе. Для устранения влияния вибраций поверхности травителя на качество формируемых решеток кварцевое окно 3 приводилось в контакт с травителем. Для записи решеток использовалось излучение Ag^+ -лазера с длиной волны $\lambda = 488 \text{ нм}$ и мощностью 100 мВт. Лазерный пучок разбивался с помощью делителя на два s - или p -поляризованных пучка, диаметром 1.4 см, которые затем сводились под углом θ_0 на поверхность образца. Временная эволюция амплитуды $\xi(t)$ решетки контролировалась по интенсивности $I_{-1}(t) \sim \xi^2(t)$ дифракции пробного излучения He-Ne-лазера в минус первом порядке. Во избежание влияния пробного излучения на процесс травления интенсивность He-Ne-лазера была в 1000 раз меньше интенсивности Ag^+ -лазера. Сигнал $I_{-1}(t)$ записывался самописцем. Полупроводник InP является довольно стабильным по отношению к травлению материалом. Поэтому для реализации процесса травления InP необходимо приложение к образцу внешнего положительного по отношению к электролиту потенциала $U_a = 0.8\text{--}1.5 \text{ В}$.

В соответствии с изложенным в разд. 2 механизмом травления пространственно-неоднородное распределение интенсивности вдоль поверхности образца, обусловленное интерференцией двух лазерных пучков, ведет к созданию пространственно-неоднородной концентрации электрон-дырочных пар и к пространственно-неоднородному протравливанию образца. В результате следует ожидать формирование периодического ре-

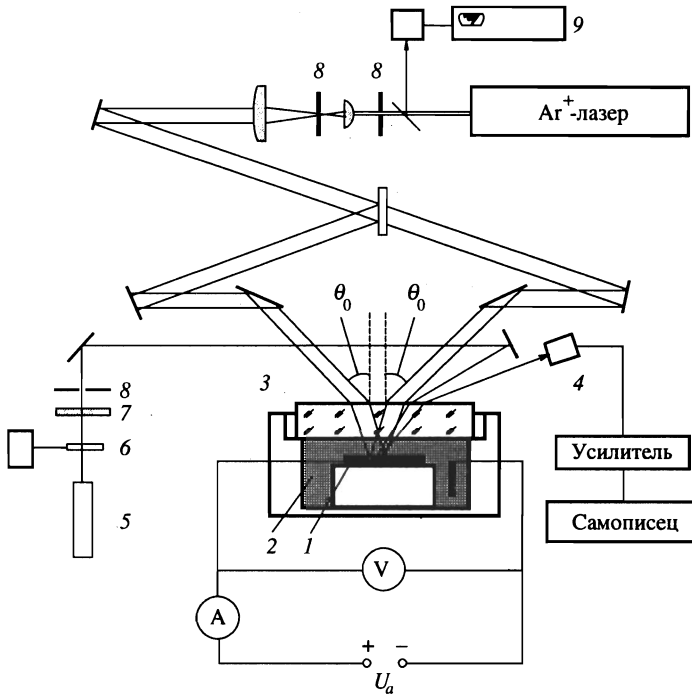


Рис. 2. Схема экспериментальной установки для формирования рельефных дифракционных решеток на поверхности полупроводников голографическим методом при фотоэлектрохимическом травлении: 1 — образец, 2 — травитель, 3 — входное окно, 4 — детектор, 5 — He-Ne-лазер, 6 — механический модулятор, 7 — оптический фильтр, 8 — диафрагмы, 9 — измеритель мощности

льефа с вектором g обратной решетки

$$g \parallel k_t, \quad g = 2k_t = 2k_0 \sin \theta_0, \quad d = \lambda / 2 \sin \theta_0, \quad (3)$$

где $d = 2\pi/g$ — период решетки, $k_0 = \omega/c = 2\pi/\lambda$, c , ω — скорость света в вакууме и частота падающего лазерного излучения, k_t — проекции волновых векторов k_0 падающих пучков на поверхность образца. При этом, согласно (2), временная эволюция фурье-амплитуды решетки (3) описывается выражением

$$\xi(t) = \alpha It, \quad (4)$$

где I — интенсивность лазерных пучков, t — время экспонирования.

При использовании голографического метода нами были сформированы дифракционные решетки высокого качества с периодами $d = 0.24\text{--}0.54$ мкм на площади порядка 1 см^2 . Для формирования решеток с периодами $d = 0.24$ мкм вместо входного окна 3 использовалась призма. Периоды этих решеток и начальная стадия временной эволюции хорошо описывались формулами (3), (4).

Подчеркнем некоторые особенности генерации рельефа голографическим методом.

а) На рис. 3, 4 представлены фотографии двух решеток, сформированных практически в одинаковых условиях, но при различных ориентациях кристаллографических осей

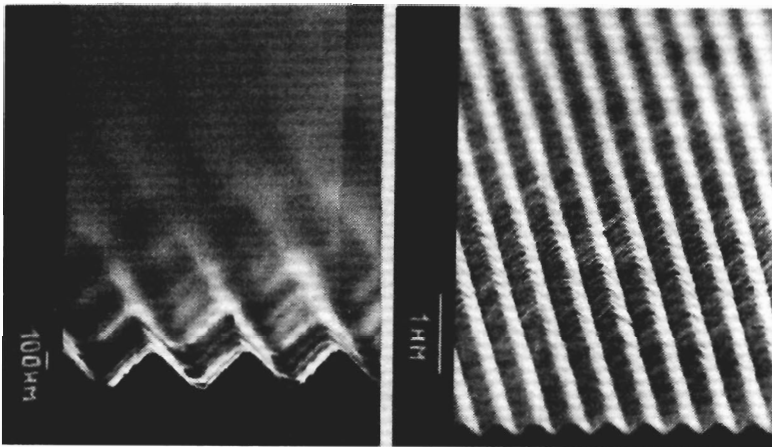


Рис. 3. SEM-фотографии дифракционной решетки с периодом 480 нм и глубиной 180 нм, изготовленной на поверхности n -InP голографическим методом. Штрихи решетки ориентированы параллельно оси $(01\bar{1})$ кристалла; $U_a = 1.38$ В, $t = 3$ мин, мощность Ag^+ -лазера $P = 25$ мВт, лазерные пучки p -поляризованы

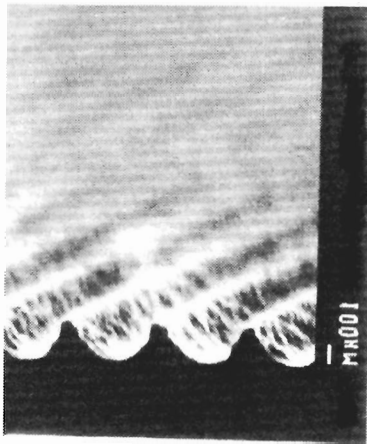


Рис. 4. SEM-фотография дифракционной решетки с периодом 480 нм и глубиной 200 нм, изготовленной на поверхности n -InP голографическим методом. Штрихи решетки ориентированы параллельно оси (011) кристалла; $U_a = 1.1$ В, $t = 3$ мин, мощность Ag^+ -лазера $P = 25$ мВт, лазерные пучки p -поляризованы

полупроводниковой подложки относительно штрихов решетки. Видно, что решетка на рис. 3 имеет симметричный треугольный профиль поверхности, а решетка на рис. 4 — симметричный U -образный профиль. При голографической записи всегда образуются решетки с симметричным рельефом, однако конкретный вид поверхностного профиля существенно зависит от ориентации кристалла.

б) Экспериментально обнаружено, что помимо кристаллографической ориентации

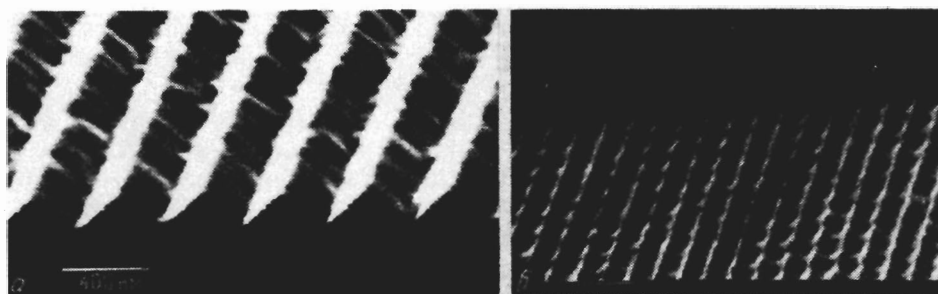


Рис. 5. SEM-фотографии двух дифракционных решеток с периодом 400 нм, изготовленных на поверхности n -InP голографическим методом при: а) p -поляризации лазерных пучков; б) s -поляризации лазерных пучков, глубина решетки 60 нм

подложки на форму и глубину поверхностного рельефа существенное влияние оказывает поляризация записывающих лазерных пучков. Следует отметить, что при фотоэлектродиффузионном травлении высоколегированного n -InP эффективная длина диффузии дырок очень мала, поэтому можно пренебречь влиянием размывания фотоиндуцированных носителей заряда на глубину и форму профиля решетки в наших экспериментах. Поэтому для достижения максимальной глубины решетки (3) казалось бы необходимо, согласно (4), обеспечить большое время экспонирования t . Однако, как показали эксперименты, когда время t больше некоторого предельного времени экспонирования t_l , происходит уменьшение фурье-амплитуды решетки (3) и становится заметной генерация «паразитных» фурье-гармоник поверхностного рельефа. На рис. 5а, б представлены фотографии двух решеток, полученных при одинаковых экспериментальных условиях за исключением состояния поляризации лазерных пучков. Из рис. 5б видно, что решетка с параметрами (3) «зашумлена» перпендикулярно ориентированной квазипериодической структурой. При p -поляризации лазерных пучков, как видно из рис. 5а, процесс формирования рельефа протекал без потери качества решетки. Это означает, что время t_l или, что то же самое, предельная глубина «незашумленных» решеток зависит от поляризации падающих лазерных пучков. Впервые экспериментально замечено, что для достижения предельных глубин решеток с хорошим качеством оптимально использование p -поляризованных лазерных пучков при малых углах θ_0 и s -поляризованных лазерных пучков при больших углах θ_0 . В частности, нами были сформированы решетки хорошего качества с периодом $d = 0.24$ мкм и глубиной $h = 0.1$ мкм при использовании s -поляризованного лазерного излучения. При p -поляризации лазерных пучков качество решеток с таким периодом значительно ухудшалось. Мы полагаем, что образование «паразитных» решеток происходит благодаря конкурирующему процессу лазерно-индуцированной генерации рельефа, обусловленному резонансным возбуждением ПЭВ (см. разд. 4.2).

В заключение раздела перечислим основные достоинства и недостатки голографического метода записи решеток. К достоинствам следует отнести высокую степень монохроматичности формируемых решеток, их однородность по амплитуде и фазе в пределах лазерного пятна. К недостаткам — зависимость формы поверхностного профиля

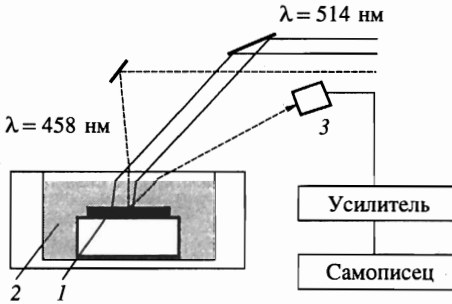


Рис. 6. Схема экспериментальной установки: 1 — образец n -GaAs, 2 — травитель, 3 — устройство, регистрирующее временную зависимость интенсивности $I_{-1}(t)$ дифракции пробного излучения ($\lambda = 458$ нм) в минус первом порядке

от кристаллографической ориентации подложки, высокая чувствительность метода к вибрациям оптических элементов.

4. ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННАЯ ГЕНЕРАЦИЯ ПОВЕРХНОСТНЫХ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ВОЛН И ПОВЕРХНОСТНОГО ПЕРИОДИЧЕСКОГО РЕЛЬЕФА ПОД ДЕЙСТВИЕМ ОДНОГО ЛАЗЕРНОГО ПУЧКА — МЕТОД ЛИГ ПЭВ

В настоящем разделе сформулированы основные результаты развитой нами теории линейного [22, 25] и нелинейного [26] режимов вынужденной генерации ПЭВ и периодического рельефа при жидкофазном травлении полупроводников. Проведено экспериментальное доказательство справедливости теории [22, 25]. Исследованы предсказанные теорией возможности монохроматизации генерируемого рельефа. Обсуждаются достоинства и недостатки метода ЛИГ ПЭВ.

4.1. Физический механизм [22, 25] вынужденной генерации поверхностных электромагнитных волн и поверхностного периодического рельефа при жидкофазном фотохимическом травлении полупроводников

Пусть на поверхность полупроводника n -типа, помещенного в жидкофазный травитель (см. рис. 6), падает лазерное излучение с энергией кванта большей ширины запрещенной зоны полупроводника ($\lambda = 514$ нм). Благодаря дифракции падающей плоской электромагнитной волны на всегда имеющихся затравочных шероховатостях поверхности происходит возбуждение резонансных ПЭВ. Интерференция этих ПЭВ и преломленной в среду френелевской волны приводит к пространственно-неоднородному распределению интенсивности электромагнитного поля вдоль поверхности полупроводника, что обеспечивает пространственно-неоднородную генерацию электрон-дырочных пар. Поскольку скорость фотохимического травления зависит от концентрации дырок вблизи поверхности полупроводника (см. уравнение (2)), то осуществляется пространственно-неоднородное протравливание поверхности и изменение фурье-амплитуд первоначальной затравочной шероховатости. Это, в свою очередь, ведет к временной эволюции (усилению) дифракции света и возникновению обратной связи, вследствие которой на линейной (начальной) стадии происходит экспоненциальное во времени нарастание (затухание) фурье-амплитуд ξ_g поверхностного рельефа (сравните с выражением (4)):

$$\xi_g = \xi_g^{(0)} \exp(\gamma_g t), \quad (5)$$

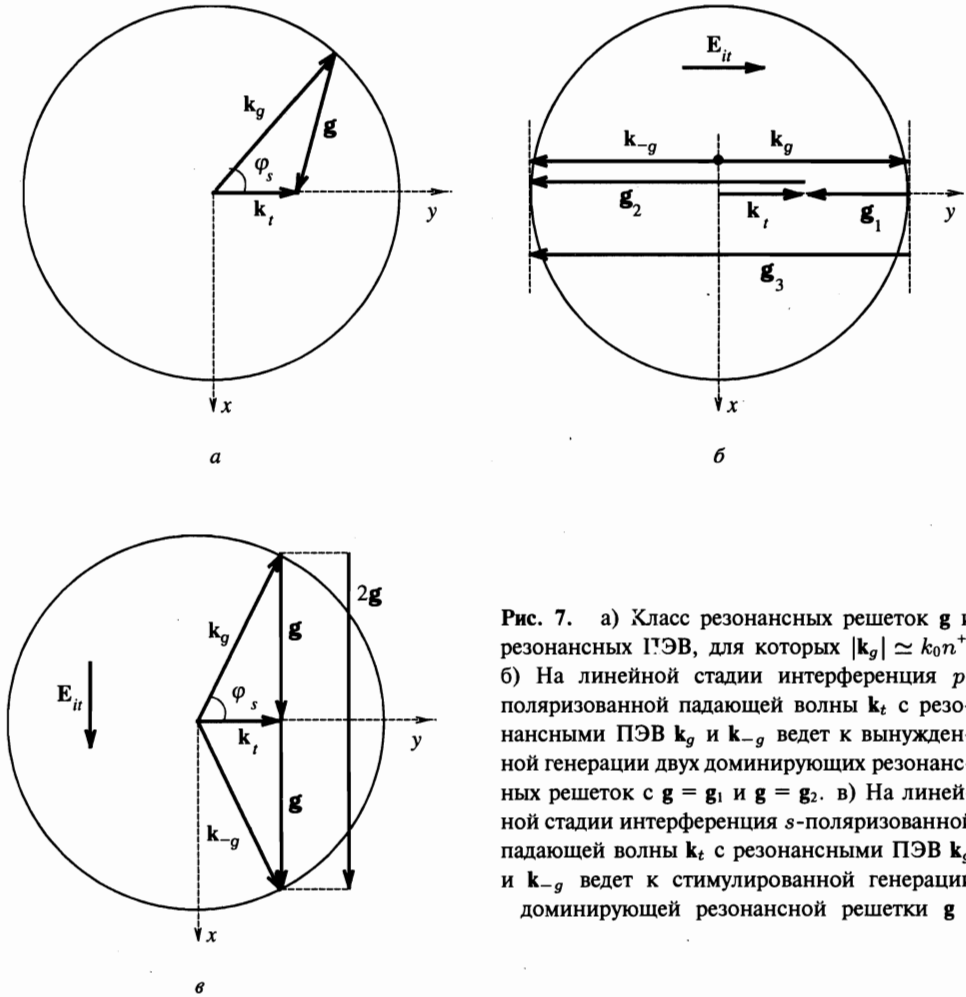


Рис. 7. а) Класс резонансных решеток \mathbf{g} и резонансных ПЭВ, для которых $|\mathbf{k}_g| \simeq k_0 n^+$. б) На линейной стадии интерференция p -поляризованной падающей волны \mathbf{k}_t с резонансными ПЭВ \mathbf{k}_g и \mathbf{k}_{-g} ведет к вынужденной генерации двух доминирующих резонансных решеток с $\mathbf{g} = \mathbf{g}_1$ и $\mathbf{g} = \mathbf{g}_2$. в) На линейной стадии интерференция s -поляризованной падающей волны \mathbf{k}_t с резонансными ПЭВ \mathbf{k}_g и \mathbf{k}_{-g} ведет к стимулированной генерации доминирующей резонансной решетки \mathbf{g}

где $\xi_g^{(0)}$ — амплитуда фурье-гармоники затравочной шероховатости с вектором обратной решетки \mathbf{g} . Периодичность рельефа достигается благодаря доминирующей решетке, обладающей максимальным инкрементом γ_g .

4.2. Теоретические результаты для линейной стадии генерации поверхностного периодического рельефа

Согласно развитой в работах [22, 25] теории при воздействии лазерного излучения на поверхность (x, y) полупроводника, погруженного в травитель, генерируется класс резонансных решеток (с вектором \mathbf{g}), для которых концы волновых векторов ПЭВ $\mathbf{k}_g = \mathbf{k}_t - \mathbf{g}$ лежат на окружности радиуса $k_0 n^+$ (см. рис. 7а). При этом в случае p -поляризации падающего излучения ($\mathbf{E}_{it} \parallel \mathbf{k}_t$) в классе резонансных структур доминируют две решетки, периоды и ориентации которых описываются соотношениями (см.

рис. 7б)

$$\mathbf{g} \parallel \mathbf{E}_{it}, \quad \mathbf{k}_g = \mathbf{k}_t - \mathbf{g}, \quad |\mathbf{k}_g| = k_0 n^+, \quad \cos \varphi_s = \pm 1, \quad (6)$$

$$d = \lambda / (n^+ \mp \varepsilon_0^{1/2} \sin \theta), \quad n^{+2} = \varepsilon_0 [1 + \varepsilon_0 (n + m)^2 / (n^2 + m^2)^2],$$

где $|\mathbf{g}| = 2\pi/d$, $k_0 = 2\pi/\lambda$, λ — длина волны света в вакууме, θ — угол падения возбуждающей волны на границу раздела «травитель–полупроводник», ε_0 и $\varepsilon = (n + im)^2$ — диэлектрические проницаемости соответственно травителя и полупроводника, φ_s — угол между направлением распространения ПЭВ и \mathbf{k}_t ; \mathbf{E}_{it} и \mathbf{k}_t — проекции электрического вектора и волнового вектора падающей волны на плоскость (x, y) , причем вектор \mathbf{k}_t ($|\mathbf{k}_t| = k_0 \varepsilon_0^{1/2} \sin \theta$) параллелен оси y . Инкременты этих двух доминирующих решеток ($\cos \varphi_s = \pm 1$) задаются формулами

$$\gamma_g^{(\mp)} = \nu_0 k_0 \frac{n^2 + m^2}{2n\varepsilon_0} (n^+ \mp \varepsilon_0^{1/2} \sin \theta), \quad \nu_0 = \nu_L - \nu_D = \alpha I_i, \quad (7)$$

где I_i — интенсивность падающего излучения, точное выражение для константы α приведено в [22, 25]. При выводе выражения (7) полагалось, что $gL \ll 1$, где L — эффективная длина диффузии дырок вблизи поверхности полупроводника.

В случае s -поляризации падающего излучения ($\mathbf{E}_i = \mathbf{E}_{it} \perp \mathbf{k}_t$) при $\theta \leq 45^\circ$ в классе резонансных структур доминирует решетка (см. рис. 7а, $\cos \varphi_s = \varepsilon_0^{1/2} \sin \theta / n^+$) с параметрами

$$\mathbf{g} \parallel \mathbf{E}_{it}, \quad d = \lambda / [n^{+2} - \varepsilon_0 \sin^2 \theta]^{1/2}, \quad \theta \leq 45^\circ, \quad (8)$$

а при $\theta \geq 45^\circ$ наибольший инкремент имеют две решетки (для которых на рис. 7а $\cos \varphi_s = 0$) с периодами

$$d = \lambda / [n^{+2} + \varepsilon_0 \sin^2 \theta]^{1/2}, \quad \theta \geq 45^\circ, \quad (9)$$

где соотношение для n^+ определено в (6). Выражение для инкремента решетки (8) при $Lg \ll 1$ имеет вид

$$\gamma_g = \nu_0 k_0 \frac{n^2 + m^2}{nn^{+2}} [n^{+2} - \varepsilon_0 \sin^2 \theta]^{1/2}, \quad \nu_0 = \nu_L - \nu_D = \alpha I_i. \quad (10)$$

Следует отметить, что при вычислениях по формулам (5), (7), (10) возможно получение несколько завышенных значений инкрементов по сравнению с экспериментальными. На это имеются две причины. Во-первых, при нарушении неравенства $Lg \ll 1$ становится существенным влияние диффузного расплывания носителей заряда, приводящего к уменьшению γ_g . Во-вторых, выражения (5), (7), (10) имеют место для неполирующих травителей. В случае использования полирующих электролитов в (5) необходимо сделать замену $\gamma_g \rightarrow \gamma_g - \alpha_g$, где $\alpha_g > 0$ и характеризует скорость полировки шероховатостей при $I_i = 0$.

Обсудим изложенные в п. б) разд. 3 экспериментальные результаты с точки зрения рассмотренного здесь механизма лазерно-индуцированной неустойчивости поверхности. При воздействии на поверхность двух s -поляризованных пучков формируется

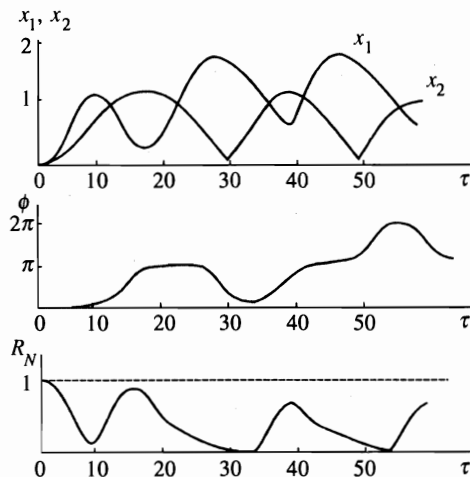


Рис. 8. Временная эволюция нормированных амплитуд первой x_1 и второй x_2 пространственных фурье-гармоник поверхностного рельефа, относительной фазы ϕ и нормированного коэффициента зеркального отражения R_N в процессе фотохимического травления поверхности n -GaAs, стимулированного одним s -поляризованным лазерным лучом; $\lambda = 530$ нм, $n = 4.2$, $m = 0.33$, $\epsilon_0^{1/2} = 1.35$

голографическая решетка (3), (4). Однако под действием каждого из лазерных пучков должен экспоненциально (см. (5)) нарастать континуум резонансных решеток с доминирующей решеткой (8), штрихи которой ориентированы перпендикулярно к штрихам голографической решетки (см. рис. 5б). Действительно, экспериментально измеренные периоды перпендикулярно ориентированных структур на рис. 5б хорошо согласуются с теоретическими оценками по формулам (3) и (8). Аналогично, при действии r -поляризованных лазерных пучков должна генерироваться суперпозиция голографической решетки (3) и резонансных решеток (6). Экспериментальный факт существования оптимальной поляризации для голографической записи глубоких решеток при малых и больших углах θ_0 (см. разд. 3, п. б)) интерпретируется теоретически на основе сравнения величин инкрементов (7) и (10). Из сказанного следует, что конкурирующий процесс ЛИГ ПЭВ накладывает принципиальное ограничение на предельную глубину голографических решеток (3).

4.3. Осцилляционный режим генерации пространственных фурье-гармоник на нелинейной стадии лазерно-индуцированного формирования рельефа. Теория

Линейная стадия стимулированной генерации рельефа, характеризуемая экспоненциальным во времени законом (5) нарастания фурье-амплитуд резонансных решеток, имеет место лишь при малых ξ_g , когда амплитуды резонансных ПЭВ $E(\mathbf{k}_g) \ll E_i$. При этом, согласно теории возмущений, $E(\mathbf{k}_g) \sim \xi_g$, т. е. генерация континуума резонансных решеток сопровождается экспоненциальным во времени нарастанием амплитуд резонансных ПЭВ. При увеличении времени экспонирования зависимость амплитуд резонансных ПЭВ от ξ_g становится нелинейной, а амплитуды могут сравниваться ($E(\mathbf{k}_g) \approx E_i$) и даже значительно превышать ($E(\mathbf{k}_g) \gg E_i$) амплитуду падающего поля E_i [30]. Ясно при этом, что динамика формирования рельефа будет определяться не только интерференцией падающей волны с лазерно-индуцированным континуумом ПЭВ, но и интерференцией различных ПЭВ между собой. Если при теоретическом анализе ограничиться рассмотрением лишь доминирующих решеток и соответствующих им резонансных ПЭВ (модель дискретных мод), то из рис. 7в нетрудно увидеть,

что в случае s -поляризации падающего излучения наряду с решеткой \mathbf{g} (8) на нелинейной стадии должна генерироваться решетка с удвоенной пространственной частотой $2\mathbf{g}$, обусловленная интерференцией доминирующих резонансных ПЭВ с волновыми векторами \mathbf{k}_g и \mathbf{k}_{-g} между собой. Аналогично, в случае p -поляризации падающего излучения следует ожидать взаимосвязанной генерации решеток \mathbf{g}_1 , \mathbf{g}_2 (6) и решетки с суммарной пространственной частотой $\mathbf{g}_3 = \mathbf{g}_1 + \mathbf{g}_2$ (см. рис. 7б). Временная эволюция рельефа в случае s -поляризованного лазерного излучения, рассчитанная в рамках модели дискретных мод на основе аналитической теории [26], представлена на рис. 8, где

$$\tau = 2\gamma_g t, \quad \xi_{pg} = |\xi_{pg}| \exp(-i\varphi_p), \quad \phi = 2\varphi_1 - \varphi_2, \quad p = 1, 2,$$

$$x_1 = g|\xi_g|/\beta_n, \quad x_2 = 2g^2|\xi_{2g}| / (\beta_n k_0 \varepsilon_0^{1/2}), \quad R_N = R_s/R_f.$$

Здесь R_s , R_f — коэффициенты зеркального отражения, соответственно, от гофрированной и плоской поверхности, $\beta_n = \varepsilon_0^{1/2} n / (n^2 + m^2) \ll 1$, инкремент γ_g определен формулой (10), φ_1 , φ_2 — фазы первой \mathbf{g} и второй $2\mathbf{g}$ гармоник поверхностного рельефа. Из рис. 8 видно, что процесс генерации рельефа носит характер противофазных осцилляций модулей амплитуд первой и второй гармоник поверхностного профиля и сопровождается временным изменением разности фаз ($\varphi_1 - \varphi_2$). Из рис. 8 следует также, что в моменты времени, когда $R_N = 0$, формируется такой профиль поверхностного рельефа, на котором полностью подавляется зеркально отраженное излучение от лазерно-индуцированной поверхности. Осцилляционный режим генерации гармоник \mathbf{g}_1 , \mathbf{g}_2 и \mathbf{g}_3 (см. рис. 7б) в процессе лазерного испарения вещества предсказывается и в случае p -поляризованного лазерного излучения [31]. В работе [32] возможность возникновения осцилляционного режима при нормальном падении света показана на основе решения задачи дифракции численным методом, не использующим гипотезу Рэлея. Однако нам неизвестны работы, где факт существования осцилляционного режима временной эволюции подтверждался бы экспериментально.

4.4. Экспериментальное исследование процесса формирования периодического рельефа на поверхности n -GaAs методом ЛИГ ПЭВ

Схема экспериментальной установки приведена на рис. 6. Мы исследовали процесс лазерно-индуцированной генерации рельефных решеток на подложках n -GaAs ($n \approx 2 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$) под действием s - и p -поляризованного излучения Ag^+ -лазера с длиной волны $\lambda = 514 \text{ нм}$, интенсивностью $5\text{--}100 \text{ мВт/см}^2$ и диаметром поперечного сечения лазерного пучка на поверхности образца 0.4 см . Временная эволюция фурье-амплитуды поверхностного рельефа $\xi_g(t)$ контролировалась измерением интенсивности $I_{-1}(t)$ ($I_{-1} \sim \xi_g^2(t)$) пробного пучка ($\lambda = 458 \text{ нм}$) в минус первом порядке дифракции. Степень некогерентности генерируемого рельефа оценивалась по измерению расходимости дифрагированного пробного пучка.

Согласно развитой в [22, 25] теории для уменьшения степени некогерентности решеток, генерируемых методом ЛИГ ПЭВ, необходимо использовать s -поляризованный лазерный пучок при углах падения $0 \ll \theta < 45^\circ$. Этот факт подтверждается экспериментально. На рис. 9а, б, в представлены SEM-фотографии решеток, которые получены при p -, s -поляризации генерирующего излучения и при нормальном падении пучка на поверхность образца. Степень монохроматичности решетки, показанной на

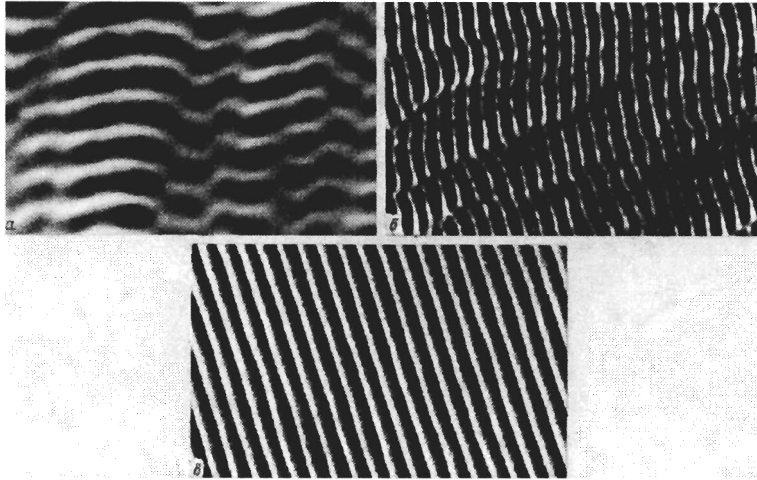


Рис. 9. SEM-фотографии дифракционных решеток, сформированных на образцах n -GaAs методом ЛИГ ПЭВ. Во всех случаях штрихи решеток ориентированы перпендикулярно вектору электрического поля E_{it} ; а) p -поляризованный лазерный пучок, $\theta = 38^\circ$, $I_i = 100$ мВт/см², травитель HF:H₂O₂:H₂O = 1:2:30; б) $\theta = 0^\circ$, $I_i = 50$ мВт/см², травитель HF:H₂O₂:H₂O=1:2:60; в) s -поляризованный лазерный пучок, $\theta = 38^\circ$, $I_i = 50$ мВт/см², травитель HF:H₂O₂:H₂O = 1:2:60, глубина решетки $h = 50$ нм

рис. 9в, значительно выше, чем для решеток, представленных на рис. 9а, б. Измеренные периоды и ориентации решеток хорошо согласуются с теоретическими значениями, вычисленными по формулам (6), (8), где $n = 4.3$, $m = 0.36$ и $\epsilon_0^{1/2} = 1.35$ при $\lambda = 514$ нм [33]. Кристаллографическая ориентация подложки не оказывала существенного влияния на параметры формируемых решеток.

На рис. 10а приведена характерная зависимость интенсивности пробного пучка в минус первом порядке дифракции $I_{-1} \sim \xi_g^2$ от времени, полученная в процессе роста решетки (8) при действии s -поляризованного лазерного пучка. Вначале наблюдается

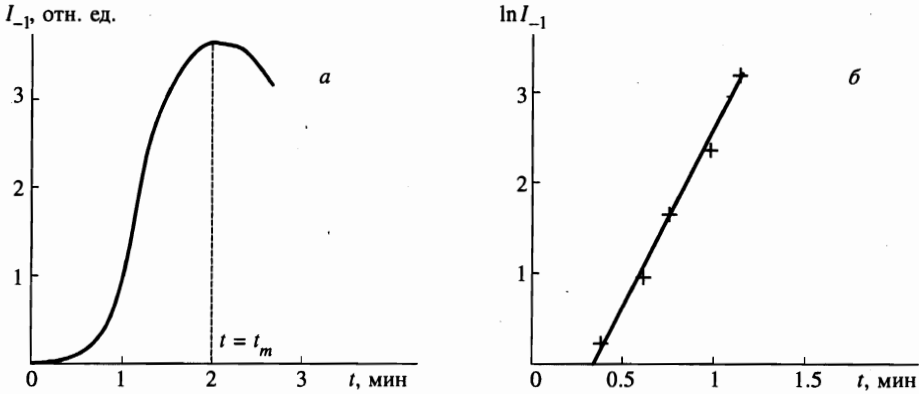


Рис. 10. Зависимость интенсивности пробного сигнала в минус первом порядке дифракции от времени экспозиции t . Процесс генерации периодического рельефа (8) осуществлялся падающим под углом $\theta = 18^\circ$ s -поляризованным пучком в травителе $\text{HF}:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O} = 10:1:30$; а) $I_i = 50$ мВт/см², $\gamma_g - \alpha_g = 2.25$ мин⁻¹; б) $I_i = 30$ мВт/см², $\gamma_g - \alpha_g = 1.5$ мин⁻¹

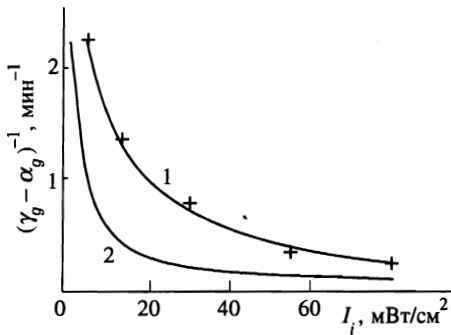


Рис. 11. Зависимость инкремента роста дифракционной решетки (8) от интенсивности падающего под углом $\theta = 18^\circ$ s -поляризованного излучения (травитель $\text{HF}:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O} = 10:1:30$): 1 — экспериментальная кривая $1/(\gamma_g - \alpha_g)$; 2 — теоретическая кривая $1/\gamma_g$, построенная по формуле (10)

рост сигнала, затем насыщение и после достижения максимума в момент $t = t_m$ — спад до практически нулевого значения I_{-1} . При этом, несмотря на исчезновение резонансной решетки (8), поверхность образца GaAs оказывается сильно всхолмленной. Во всех экспериментах осцилляций $I_{-1}(t)$, отвечающих рис. 8, не наблюдалось. На рис. 10б дан экспериментальный график $\ln(I_{-1})$ от t для временной области $t \ll t_m$. Линейный вид этой зависимости свидетельствует о справедливости теоретического предсказания об экспоненциальном характере (см. формулу (5)) нарастания резонансной решетки (8) на начальной стадии формирования рельефа методом ЛИГ ПЭВ. Тангенс наклона прямой на рис. 10б определяет инкремент $2(\gamma_g - \alpha_g)$.

На рис. 11 приведены теоретическая (γ_g) и экспериментальная ($\gamma_g - \alpha_g$) зависимости инкрементов от интенсивности I_i падающего s -поляризованного лазерного излучения с $\lambda = 514$ нм. Теоретические значения γ_g рассчитывались по формуле (10). Необходимые для этого значения однородной скорости травления ν_0 находились экспериментально измерением (с помощью профилометра TALYSTEP) зависимости глубины протравленной ямки от времени травления при заданных значениях I_i и θ . Было обна-

ружено, в согласии с теорией, что зависимость ν_0 от I_i является линейной. В частности, при использовании травителя $\text{HF:H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O} = 10 : 1 : 30$, $\theta = 0^\circ$ и $I_i = 100$ мВт/см² измеренная скорость травления $\nu_0 = 0.5$ мкм/мин. Из рис. 11 видно, что измеренные значения $(\gamma_g - \alpha_g)$ примерно в 4 раза меньше расчетных значений γ_g . Тем не менее согласие между теоретическими и экспериментальными значениями инкрементов следует признать хорошим, если учесть замечания, сделанные в тексте после выражения (10).

Таким образом, проведенное в разд. 4.4 сравнение теоретических и экспериментальных результатов свидетельствует об адекватности предложенного нами (см. разд. 4.1) механизма лазерно-индуцированной неустойчивости поверхности и справедливости развитой в [22, 25] теории линейной стадии формирования рельефа при ЛИГ ПЭВ (см. разд. 4.2).

Обсудим вопрос о качестве формируемых методом ЛИГ ПЭВ решеток. Показанная на рис. 9в решетка является лишь малым фрагментом сформированной рельефной структуры. Осмотр больших площадей поверхности с помощью оптического и электронного микроскопов показал, что лазерно-стимулированная рельефная структура представляет собой набор островков, внутри которых решетки имеют качество, показанное на рис. 9в. Границы между островками характеризуются сбоем фазы решеток — изломами, искривлениями штрихов решеток. Степень немонахроматичности Δg сформированных на большой площади решеток оценивалась по расходимости $\Delta\theta''_{probe}$ дифрагированного в минус первый порядок пробного излучения ($\lambda = 488$ нм):

$$k_0 \sin \theta'_{probe} + g = k_0 \sin \theta''_{probe}, \quad \Delta g = k_0 \cos \theta''_{probe} (\Delta\theta''_{probe}),$$

где θ'_{probe} — угол падения пробного излучения на границу раздела «воздух–травитель», θ''_{probe} — угол отражения в воздух дифрагированного в минус первый порядок пробного лазерного пучка. Для наиболее качественных решеток, изготовленных нами методом ЛИГ ПЭВ, измеренная расходимость $\Delta\theta''_{probe} = 3^\circ$ и, следовательно, экспериментальное значение немонахроматичности $(\Delta g)_{exp} = 6.3 \times 10^3$ см⁻¹. Это означает, что средний линейный размер Δx островков $(\Delta g \Delta x \simeq 2\pi)$ $\Delta x \simeq 10$ мкм. Эта оценка показывает, что формируемые методом ЛИГ ПЭВ решетки имеют довольно низкое качество.

Физическая природа немонахроматичности генерируемого рельефа состоит в следующем. Ширина резонанса Δk_g возбуждения ПЭВ конечна, причем $\Delta k_g = k_0(2nm + n^2)/(m^2 + n^2)$ [18]. Это означает, что за счет механизма ЛИГ ПЭВ будет генерироваться не только континуум резонансных решеток, для которых $\mathbf{k}_t - \mathbf{g} = \mathbf{k}_g$, $|\mathbf{k}_g| = k_0 n^+$ (см. рис. 7), но и континуум квазирезонансных решеток с шириной спектра $\Delta g \simeq \Delta k_g$, при этом дискриминация инкрементов γ_g для различных g возрастает с уменьшением Δk_g . Результирующий рельеф поверхности на линейной стадии формирования можно описать, согласно (5), выражением

$$z(t) = \iint \xi_g^{(0)} \exp(\gamma_g t - i\mathbf{g}\mathbf{r}) d\mathbf{g}. \quad (11)$$

Когда спектр затравочных шероховатостей $\xi_g^{(0)}$ широк (статистическая шероховатость), форма рельефа определяется только дискриминацией инкрементов, т. е. шириной Δk_g резонанса ПЭВ. Добротность резонанса ПЭВ в случае GaAs и $\lambda = 514$ нм невелика ($k_0/\Delta k_g = 16$, в то время как для металлов $k_0/\Delta k_g = 100-140$) и, как следствие, высока степень немонахроматичности формируемого рельефа (11).

Мы считаем, что именно по этой причине в наших экспериментах не проявляется

осцилляционный режим лазерно-индуцированной генерации рельефа (см. разд. 4.3), так как предполагаемое в теории условие дискретности мод не реализуется.

Таким образом, основным недостатком метода ЛИГ ПЭВ является высокая степень немонохроматичности формируемого рельефа на поверхности полупроводника. К достоинствам метода следует отнести: а) слабую зависимость параметров решеток от кристаллографической ориентации подложки; б) нечувствительность метода к вибрациям. Последнее обстоятельство обусловлено постоянством разности фаз падающей лазерной волны и возбуждаемой ПЭВ при вибрационных перемещениях образца в пространстве.

Описанные в этом разделе экспериментальные исследования как бы подтверждают существовавшее до сих пор мнение, что образование периодического рельефа при ЛИГ ПЭВ представляет интерес лишь с научной точки зрения как одно из ярких явлений нелинейной оптики поверхности, но на основе этого эффекта невозможно разработать технологию изготовления дифракционных решеток высокого качества. Так ли это? Исследованию этого вопроса посвящен следующий раздел.

5. ФОРМИРОВАНИЕ ДИФРАКЦИОННЫХ РЕШЕТОК ВЫСОКОГО КАЧЕСТВА НА ПОВЕРХНОСТИ ПОЛУПРОВОДНИКОВ МОДИФИЦИРОВАННЫМ МЕТОДОМ ЛИГ ПЭВ

5.1. Основная идея модифицированного метода ЛИГ ПЭВ

Проанализируем случай (обратный рассмотренному в разд. 4.4 при обсуждении формулы (11)), когда ширина спектра затравочного рельефа много меньше ширины резонанса Δk_g ПЭВ. Для ясности рассмотрим предельный случай, когда имеется только одна затравочная резонансная решетка $\xi_g^{(0)} \neq 0$, а амплитуды остальных (с $g' \neq g$) фурье-гармоник $\xi_{g'}^{(0)} = 0$. Из выражений (5), (11) видно, что на линейной стадии ЛИГ ПЭВ рельеф будет оставаться монохроматическим, несмотря на большую ширину резонанса возбуждения ПЭВ, характерную для полупроводников.

Таким образом, для повышения качества формируемой решетки необходимо предварительно создать на поверхности образца затравочный рельеф с небольшой амплитудой $\xi_g^{(0)}$ и высокой степенью монохроматичности. Это можно сделать с помощью голографического метода, а однолучевой метод ЛИГ ПЭВ использовать для углубления затравочной структуры. Голографический процесс и процесс ЛИГ ПЭВ в некоторых случаях можно осуществлять и одновременно.

Следует ожидать, что в этих условиях реализуется модель дискретных мод (см. разд. 4.3). Наблюдение осцилляционного характера временной эволюции рельефа, предсказываемого этой моделью, послужило бы хорошей проверкой развитой теории, а также дополнительным подтверждением высокой степени монохроматичности генерируемого рельефа.

Существуют две возможные схемы реализации модифицированного метода ЛИГ ПЭВ.

а) Два p -поляризованных лазерных пучка с тангенциальными составляющими волновых векторов \mathbf{k}_t и $(-\mathbf{k}_t)$ (рис. 12) формируют голографическую решетку с вектором $\mathbf{g} = 2\mathbf{k}_t$, т. е. с периодом $d = \lambda/2\varepsilon_0^{1/2} \sin \theta$. С другой стороны, каждый из падающих пучков генерирует решетки с периодом $d = \lambda/2\varepsilon_0^{1/2}(1 \pm \sin \theta)$ вследствие механизма ЛИГ ПЭВ (см. выражение (6), где $n^+ \approx \varepsilon_0^{1/2}$). Если периоды этих решеток совпадают, то в процессе формирования рельефа участвуют как голографический меха-

низм, так и механизм ЛИГ ПЭВ. Для реализации этой ситуации необходимо, чтобы $\theta = \theta_c = \arcsin(1/3) \approx 19.5^\circ$. При этом период решетки равен

$$d = 3\lambda/2\varepsilon_0^{1/2}, \quad g = 2k_t = (2/3)k_0\varepsilon_0^{1/2}, \quad \mathbf{g} \parallel \mathbf{E}_{it} \parallel \mathbf{y}. \quad (12)$$

Из рис. 12 и подписи к этому рисунку ясно, что следует ожидать одновременной генерации первой g , второй $2g$ и третьей $3g$ гармоник поверхностного рельефа с векторами $2k_t$, $4k_t$ и $6k_t$.

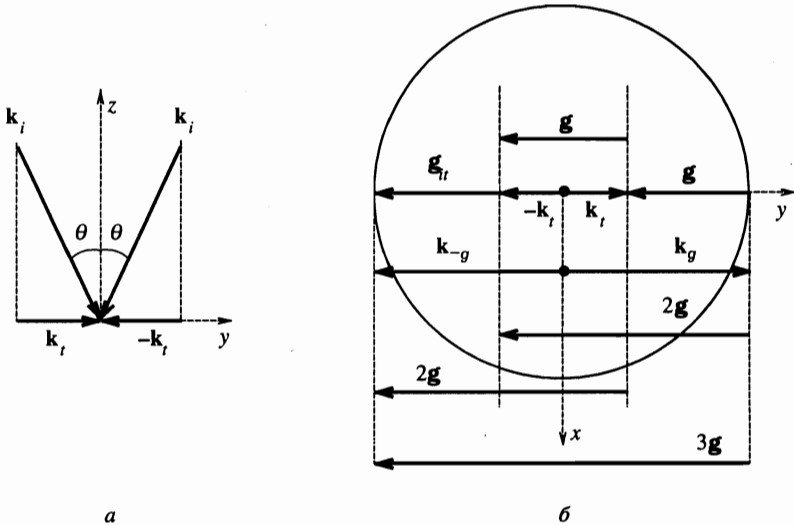


Рис. 12. Первая схема модифицированного метода ЛИГ ПЭВ: а) геометрия лазерного облучения границы раздела $z = 0$ «травитель-полупроводник»; б) взаимная ориентация волновых векторов k_t и $(-k_t)$ падающих волн, резонансных ПЭВ k_g и k_{-g} и формируемых решеток g , $2g$ и $3g$. Радиус окружности равен $k_0 n^+$. Интерференция между волнами с k_t и $(-k_t)$ приводит к образованию голографической решетки g . В результате дифракции падающих волн на решетке g возбуждаются резонансные ПЭВ с k_g и k_{-g} . Углубление решетки g происходит благодаря интерференции волн k_t с k_g и k_{-t} с k_{-g} . Решетка $2g$ генерируется за счет интерференции волн k_t с k_{-g} и k_{-t} с k_g . Формирование фурье-гармоники $3g$ обусловлено интерференцией резонансных ПЭВ с k_g и k_{-g} между собой

Рассмотренная выше схема обладает существенным недостатком: для изменения периода решетки необходимо изменение длины волны λ падающих лазерных пучков. Вторая схема модифицированного метода ЛИГ ПЭВ свободна от этого недостатка.

б) Затравочная решетка с периодом $d = \lambda/2\varepsilon_0^{1/2} \sin \theta$ формируется двумя s - или p -поляризованными лазерными пучками k_t и $(-k_t)$ голографическим методом (см. рис. 13). Под действием третьего s -поляризованного лазерного пучка k_{3t} , падающего под углом θ_3 , за счет механизма ЛИГ ПЭВ генерируется решетка (8) с периодом $d = \lambda/\varepsilon_0^{1/2} \cos \theta_3$. Когда периоды этих решеток совпадают, т. е. когда

$$d = \lambda/\varepsilon_0^{1/2} \cos \theta_3, \quad \cos \theta_3 = 2 \sin \theta \quad (\theta < 30^\circ), \quad \mathbf{g} \parallel \mathbf{E}_{3t} \parallel \mathbf{x}, \quad (13)$$

то в процесс создания решетки (13) оказываются вовлечены как голографический механизм, так и механизм ЛИГ ПЭВ. Из рис. 13 и подписи к нему видно, что следу-

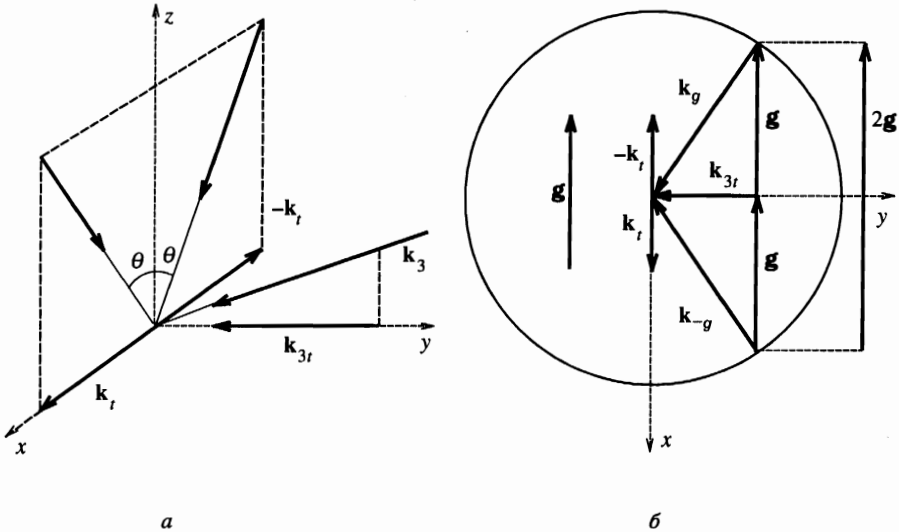


Рис. 13. Вторая схема модифицированного метода: а) геометрия лазерного облучения границы раздела $z = 0$ «травитель–полупроводник»; б) радиус окружности равен $k_0 n^+$. Интерференция лазерных пучков с k_t и $(-k_t)$ приводит к формированию голографической решетки g . Дифракция третьего падающего лазерного пучка k_{3t} на решетке g приводит к возбуждению двух резонансных ПЭВ k_g и k_{-g} . Углубление решетки g происходит благодаря интерференции волн k_g с k_{3t} и k_{-g} с k_{3t} . Генерация второй фурье-гармоники $2g$ обусловлена интерференцией резонансных ПЭВ с волновыми векторами k_g и k_{-g} между собой

ет ожидать формирования рельефа, являющегося суперпозицией первой g и второй $2g$ фурье-гармоник. Изменение периода (13) в этом случае можно осуществлять изменением углов падения θ и θ_3 в соответствии с уравнением $\cos \theta_3 = 2 \sin \theta$.

5.2. Временная эволюция глубины и формы периодического рельефа, формируемого модифицированным методом ЛИГ ПЭВ. Эксперимент

Схема экспериментальной установки для исследования временной эволюции рельефа, формируемого по первой схеме модифицированного метода ЛИГ ПЭВ, приведена на рис. 2. Для реализации второй схемы данного метода установка модифицировалась согласно геометрии, показанной на рис. 13а. В экспериментах использовалось излучение Ag^+ -лазера (мощность 30 мВт, диаметры пучков 1.4 см) с длиной волны $\lambda = 514$ нм для записи решеток по первой схеме и с $\lambda = 488$ нм при формировании рельефа на основе второй схемы модифицированного метода ЛИГ ПЭВ. Фотоэлектрохимическое травление осуществлялось на образцах n -InP ($n = 5 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$) при $U_a \approx 1.1$ В в электролите $HNO_3:HCl:H_2O = 1 : 4 : 70$. Как и ранее, временная динамика амплитуды первой фурье-гармоники рельефа контролировалась по интенсивности $I_{-1}(t)$ дифракции пробного излучения в минус первом порядке.

На рис. 14 приведена характерная зависимость I_{-1} от времени формирования рельефа в геометрии, показанной на рис. 12. Из рис. 14 следует, что временная динамика первой фурье-гармоники рельефа (12) носит осциллирующий характер, что находится в полном соответствии с предсказаниями теории, основанной на модели дискретных мод

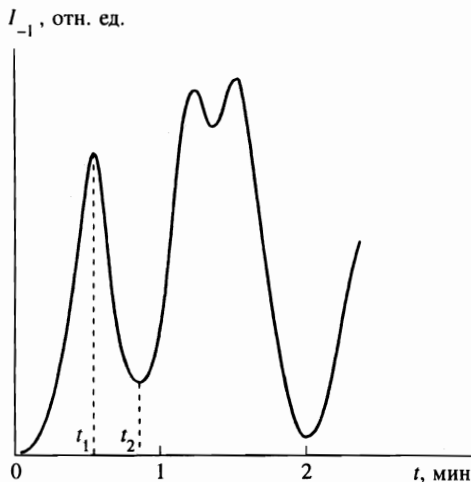


Рис. 14. Зависимость интенсивности дифрагированного в минус первый порядок пробного излучения от времени в процессе формирования рельефа с использованием первой схемы модифицированного метода ЛИГ ПЭВ

(см. разд. 4.3). Согласно этой теории, в различные моменты времени t_1 , t_2 (рис. 14) генерируются поверхностные профили рельефа с различным соотношением амплитуд и фаз первой, второй и третьей фурье-гармоник. Этот факт действительно подтверждается SEM-фотографиями решеток, представленными на рис. 15. Из рис. 15б видно, что в отличие от голографического метода модифицированный метод ЛИГ ПЭВ позволяет формировать решетки не только с симметричной, но и с асимметричной формой профиля. Аналогичные результаты были получены и при лазерно-индуцированном фотохимическом травлении ($U_a = 0$) образцов n -GaAs.

На рис. 16 приведена зависимость I_{-1} от времени t в процессе формирования рельефа на поверхности n -InP с использованием второй схемы модифицированного метода ЛИГ ПЭВ, см. рис. 13. В эксперименте затравочная решетка (13) с глубиной 20 нм была сформирована за время 20 с голографическим методом двумя p -поляризованными лазерными пучками (\mathbf{k}_t) и ($-\mathbf{k}_t$) равной интенсивности ($I_1 = I_2 \neq 0$). При этом интенсивность третьего пучка $I_3 = 0$. Дальнейшая эволюция решетки (13) осуществлялась под действием только одного s -поляризованного пучка \mathbf{k}_{3t} , т. е. при $I_3 \neq 0$, $I_1 = I_2 = 0$ за счет механизма ЛИГ ПЭВ. Отметим, что условия эксперимента соответствуют предпосылкам, заложенным при построении теории [26], см. разд. 4.3. и рис. 8. Из рис. 16 видно, что в процессе формирования рельефа амплитуда первой фурье-гармоники (13), как и следует из теории [26] (см. рис. 8а), осциллирует во времени. К сожалению, мы не имели возможности в процессе эксперимента получить кривую (аналогичную показанной на рис. 16), характеризующую временную эволюцию амплитуды второй фурье-гармоники ξ_{2g} , так как для возникновения излучательных первого или минус первого порядков дифракции на этой гармонике необходим более коротковолновый источник пробного излучения. Однако некоторые заключения о временной эволюции амплитуды ξ_{2g} могут быть сделаны на основе SEM-фотографий (см. рис. 17) полученных решеток.

На рис. 17 приведены SEM-фотографии решеток, изготовленных при остановке

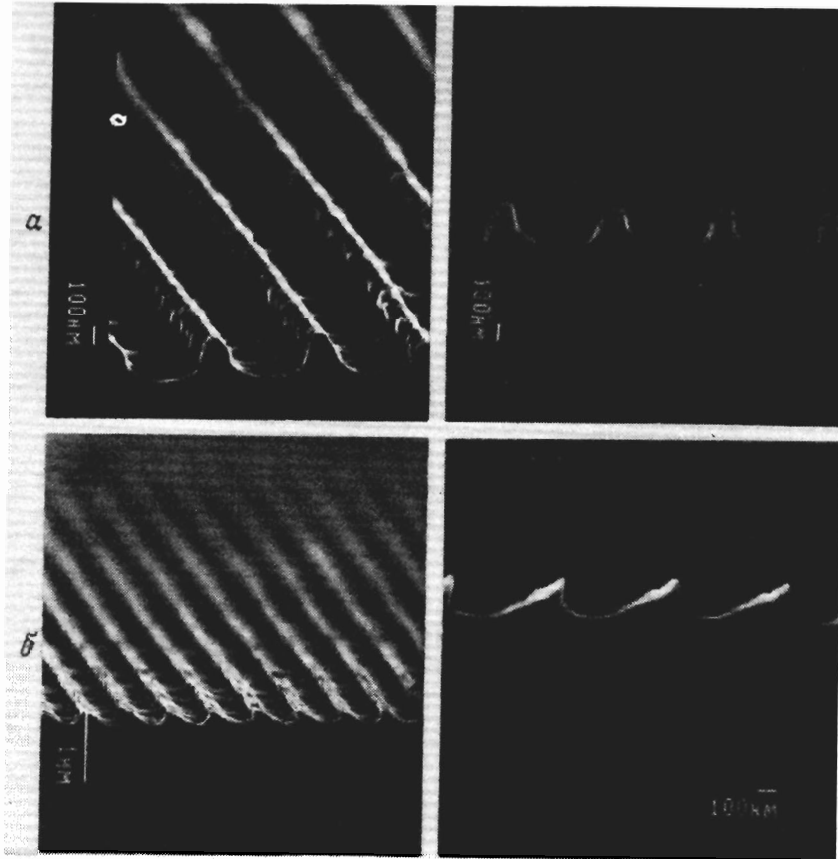


Рис. 15. SEM-фотографии дифракционных решеток с периодом $d = 540$ нм, сформированных на подложках n -InP. Процесс формирования рельефа был остановлен в момент t_1 (фото *a*) и в момент t_2 (фото *b*), см. рис. 14. Различный наклон штрихов на фотографиях *b* соответствует фотографиям поперечного скола двух половин одного и того же образца

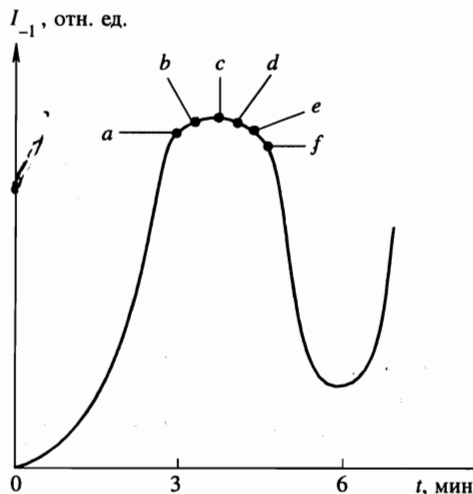


Рис. 16. Зависимость дифракционного пробного сигнала I_{-1} от времени в процессе формирования рельефа с использованием второй схемы модифицированного метода ЛИГ ПЭВ

процесса травления в моменты времени t_a, t_b, \dots, t_f , отмеченные на рис. 16 точками. Из этих фотографий видно, что на временном интервале t_a-t_f происходит значительное изменение глубины и формы поверхностного профиля. С другой стороны, из рис. 16 следует, что на этом временном интервале интенсивность пробного сигнала I_{-1} практически постоянна. Это свидетельствует о малом изменении амплитуды ξ_g первой фурье-гармоники рельефа (13). Из анализа формы поверхностного профиля представленных на рис. 17 решеток мы определили: во-первых, в фурье-спектре этих решеток присутствует вторая гармоника $2g$; во-вторых, на отрезке времени t_a-t_f происходит значительное изменение амплитуды ξ_{2g} . Далее, практически симметричная форма рельефа на фотографиях $a-e$ свидетельствует о малом изменении разности фаз первой и второй фурье-гармоник на отрезке времени t_a-t_e . Едва заметная асимметрия формы возникает лишь в момент $t = t_f$: левый склон штриха круче, чем правый. Легко видеть, что перечисленные выше экспериментальные результаты находятся в хорошем согласии с представленными на верхнем и среднем рисунках 8 теоретическими результатами, если заметить, что отрезок времени t_a-t_f на рис. 16 соответствует нормированному отрезку времени $\tau = 8-12$ на рис. 8.

Поверхностный профиль изготовленных решеток изучался также с помощью сканирующего туннельного микроскопа. В качестве примера на рис. 18 приведено изображение с помощью сканирующего туннельного микроскопа дифракционной решетки, показанной на SEM-фотографии 17d.

В экспериментах по исследованию временной эволюции поверхностного рельефа мы визуально следили также за интенсивностью зеркально отраженного пучка $I_s(t) = R_s(t)I_3$, где I_3 — интенсивность лазерного пучка с волновым вектором \mathbf{k}_3 (см. рис. 13), $R_s(t)$ — коэффициент зеркального отражения от решетки в момент времени t . В процессе временной эволюции первой фурье-гармоники, показанной на рис. 16, интенсивность $I_s(t)$ значительно уменьшалась, достигла минимума при $t = t_e$, а затем существенно возросла, т. е. наблюдался эффект лазерно-индуцированного подавления зеркального отражения [30, 34] в процессе ЛИГ ПЭВ. Этот результат также согласуется с

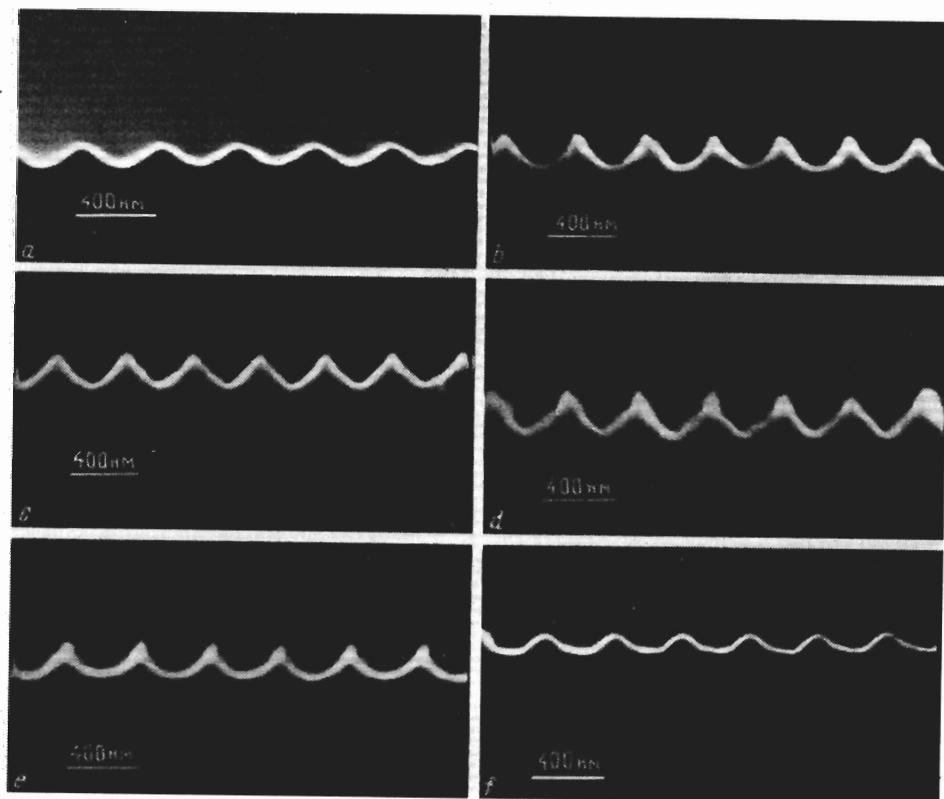


Рис. 17. SEM-фотографии сколов дифракционных решеток. Процесс формирования был остановлен соответственно в моменты t_a , t_b , t_c , t_d , t_e , t_f , показанные на рис. 16

теоретическими предсказаниями (см. нижний рис. 8).

Таким образом, мы экспериментально показали, что временная эволюция амплитуд и фаз первой и второй фурье-гармоник поверхностного профиля при формировании решеток на основе первой и второй схем модифицированного метода ЛИГ ПЭВ носит осциллирующий характер. При этом картины временной эволюции, показанные на рис. 14 и 16, являются воспроизводимыми. Это означает, что модифицированный метод ЛИГ ПЭВ дает возможность изготовления дифракционных решеток с контролируемой формой штриха, причем форму профиля можно изменять, варьируя время

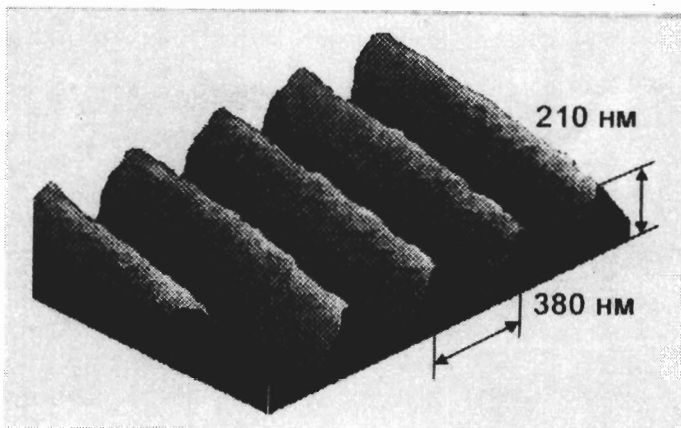


Рис. 18. Изображение с помощью сканирующего туннельного микроскопа решетки, показанной на рис. 17*d*

формирования решетки. В частности, данный метод дает возможность изготовления решеток не только с симметричным (как в случае голографического метода), но и с асимметричным рельефом поверхности.

Степень монохроматичности дифракционных решеток, сформированных модифицированным методом ЛИГ ПЭВ на площади $0.5 \times 1 \text{ см}^2$, оценивалась нами по измерению расходимости пробного излучения в минус первом порядке дифракции. Эти измерения показали, что качество изготовленных этим методом решеток не хуже, чем у решеток, сформированных голографическим методом. Из этого факта и сказанного выше можно сделать вывод, что модифицированный метод ЛИГ ПЭВ сочетает в себе достоинства как голографического метода (см. разд. 3), так и метода ЛИГ ПЭВ (см. разд. 4.4).

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе разработан новый безмасочный модифицированный метод ЛИГ ПЭВ для формирования субмикронных рельефных дифракционных решеток в процессе жидкофазного фотохимического или фотоэлектрохимического травления полупроводников $n\text{-GaAs}$, $n\text{-InP}$. Модифицированный метод ЛИГ ПЭВ является комбинацией голографического метода и метода ЛИГ ПЭВ и сочетает достоинства этих методов: высокое качество формируемых решеток, повышенная устойчивость к вибрациям, возможность управления формой периодического рельефа. В противоположность голографическому методу, данный метод дает возможность формирования дифракционных решеток не только с симметричным, но и с асимметричным профилем штриха.

Проведено экспериментальное исследование физических процессов, лежащих в основе разработанного метода. Измерены инкременты экспоненциального во времени нарастания амплитуд доминирующих фурье-гармоник на линейной стадии формирования рельефа. Путем их сравнения с теоретическими значениями доказана адекватность предложенного нами механизма лазерно-индуцированной генерации дифракционных решеток. Изучены пути монохроматизации генерируемого рельефа.

Впервые экспериментально показано, что временная эволюция лазерно-индуцированного рельефа на нелинейной стадии носит характер противофазных осцилляций амплитуд и фаз первой и второй фурье-гармоник поверхностного профиля. Доказано, что в процессе лазерно-индуцированной генерации поверхностных структур возможно формирование такого рельефа, на котором происходит значительное подавление зеркального отражения от поверхности. Продемонстрировано хорошее согласие между теоретическими и экспериментальными результатами.

С использованием модифицированного метода ЛИГ ПЭВ и голографического метода сформированы высококачественные рельефные дифракционные решетки соответственно с периодами $d = 0.38-0.54$ мкм и $d = 0.24-0.54$ мкм, с глубиной $h = 0.1-0.2$ мкм на площади 0.5×1 см².

Авторы благодарны В. И. Панову, в лаборатории которого получены изображения поверхности решеток с использованием сканирующего туннельного микроскопа.

Проведенные нами исследования были поддержаны Российским фондом фундаментальных исследований (проекты № 95-02-05825, 96-02-18532), Российской государственной научно-технической программой «Наукоемкие технологии», Международной программой INTAS-94-902.

Литература

1. *Интегральная оптика*, под ред. Т. Тамира, Мир, Москва (1978); T. Tamir, *Beam and Waveguide couplers*, in Topics in applied physics, Vol. 7, Integrated Optics, ed. by T. Tamir, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New-York (1979).
2. В. А. Киселев, КЭ 1, 1578 (1974).
3. Т. Aoyagi, Y. Aoyagi, and S. Namba, Appl. Phys. Lett. **29**, 303 (1976).
4. M. T. Wolodarczyk and S. R. Seshadri, J. Apl. Phys. **58**, 69 (1985).
5. R. L. Roncone, L. Li, A. K. Bates et al., Appl. Opt. **32**, 4522 (1993).
6. J. Sarathy, R. A. Mayer, K. Jung et al., Opt. Lett. **19**, 798 (1994).
7. K. Utaka, S. Akiba, K. Sakai, and Y. Matsushima, IEEE J. of Quant. Electron. QE-**22**, 1042 (1986).
8. M. Okai, T. Tsuchiya, K. Uomi et al., IEEE J. of Quant. Electron. **27**, 1761 (1991).
9. V. Mizzahi, D. J. DiGiovanni, R. M. Atkins et al., J. of Lightwave Technology **11**, 2021 (1993).
10. H. Hillmer, H. L. Zhu, A. Grabmaier et al., Appl. Phys. Lett. **65**, 2130 (1994).
11. V. N. Seminogov, A. I. Khudobenko, V. Ya. Panchenko, and V. I. Sokolov, Proc. SPIE **2382**, 224 (1995).
12. *Integrated optical circuits and components*, ed. by L. D. Hutchenson, Marcel Dekker, Inc., New York, Basel (1987).
13. J. Martin and F. Ouellette, Electron. Lett. **30**, 811 (1994).
14. H. Haidner, P. Kipfer, J. T. Sheridan et al., Opt. Engineering **32**, 1860 (1993).
15. J. R. Leger, G. J. Swanson, and W. B. Veldkamp, Appl. Opt. **26**, 4391 (1987).
16. Н. Н. Головатюк, В. Н. Окорков, В. Я. Панченко и др., Изв. Академии Наук. Сер. физ. **57**, № 12, 39 (1993).
17. V. N. Okorkov, V. Ya. Panchenko, B. V. Russkikh et al., Optical Engineering **33**, 3145 (1994).
18. Л. В. Беляков, Д. Н. Горячев, О. М. Сресели, Письма в ЖЭТФ **11**, 1162 (1985).
19. K. Berthold, W. Beinstingl, and E. Gornik, Opt. Lett. **12**, 69 (1987).
20. A. Koch, W. Beinstingl, K. Berthold, and E. Gornik, Appl. Phys. Lett. **52**, 1164 (1988).
21. V. I. Konov, P. I. Nikitin, D. G. Satjukov, and S. A. Uglor, J. of Sensors and actuators A **22**, 498 (1989).

22. В. Я. Панченко, В. Н. Семиногов, В. И. Соколов, *Итоги науки и техники*, Сер. Физические основы лазерной и пучковой технологии, т. 3, под ред. Н. И. Коротеева, В. Я. Панченко, ВИНТИ, Москва (1989), с. 92.
23. С. А. Ахманов, В. И. Емельянов, Н. И. Коротеев, В. Н. Семиногов, УФН **147**, 675 (1985); В. И. Емельянов, В. Н. Семиногов, *Итоги науки и техники. Сер. Физические основы лазерной и пучковой технологии*, под ред. Н. И. Коротеева, В. Я. Панченко, ВИНТИ, Москва, т. 1 (1988), с. 118; т. 3 (1989), с. 57.
24. Г. А. Голубенко, А. М. Прохоров, В. А. Сычугов, Т. В. Тулайкова, *Поверхность. Физ., хим., мех.* № 1, 88 (1985).
25. В. Я. Панченко, В. Н. Семиногов, А. И. Худобенко, КЭ **16**, 1226 (1989).
26. В. Н. Семиногов, А. И. Худобенко, ЖЭТФ **96**, 504 (1989).
27. В. Я. Панченко, В. К. Попов, В. Н. Семиногов, А. И. Худобенко, *Изв. Российской Академии наук. Сер. физ.* **56**, № 4, 91 (1992).
28. G. C. Tisone and A. W. Jonson, *Appl. Phys. Lett.* **42**, 530 (1983).
29. R. M. Osgood, A. Sanchez-Rubio, D. J. Ehrlich, and V. Daneu, *Appl. Phys. Lett.* **40**, 391 (1982).
30. С. А. Ахманов, В. Н. Семиногов, В. И. Соколов, ЖЭТФ **93**, 1654 (1987).
31. Л. А. Большов, А. В. Московченко, М. И. Персианцев, ЖЭТФ **94**, № 4, 62 (1988).
32. В. В. Капаев, *Поверхность. Физ., хим., мех.* № 4, 110 (1991).
33. *Оптические свойства полупроводников. Соединения типа $A^{III}B^V$* , под ред. Р. Уиллардсона, А. М. Бира, Мир, Москва (1970).
34. В. И. Емельянов, В. Н. Семиногов, В. И. Соколов, КЭ **14**, 33 (1987); В. И. Емельянов, В. Н. Семенов, КЭ **14**, 47 (1987).