

非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构的电场模拟

孙晓雁^{1,2}, 沈正祥^{1,2}, 童广德^{1,2,3}, 张锦龙^{1,2}, 王占山^{1,2}

- (1. 先进微结构材料教育部重点实验室, 上海 200092; 2. 同济大学 物理科学与工程学院
精密光学工程技术研究所, 上海 200092;
3. 上海无线电设备研究所电磁散射国家重点实验室, 上海 200092)

摘要: 如何进一步降低超光滑光学元件表面缺陷是现代超精密光学元件制作技术研究的热点之一。在传统抛光方法的基础上, 引入非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构这一新型方法, 进一步去除超光滑抛光表面残留的纳米级表面微缺陷, 降低表面粗糙度。通过建立超光滑硅表面的微结构几何模型, 采用时域有限差分法对表面微结构凸起在 532 nm 激光作用下的局域电场增强进行数值模拟。对比不同尺度的微结构所激发的最大电场强度表明, 在基底峰谷值小于 25.5 nm 时, 随微结构尺度递增, 所激发的局域电场强度最大值约呈线性增长; 随微结构倾斜率的逐渐递增, 电场强度最大值也呈递增趋势。通过对激光诱导表面微结构调制电场的数值模拟, 构建了硅表面微结构诱导平滑的物理图像, 为描绘激光辐照下非绝热近场光学诱导平滑表面微结构的物理过程提供了有力的理论支持。

关键词: 近场光学; 超光滑; 时域有限差分; 电场模拟; 光化学反应

中图分类号: O432.1+2 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-2276(2014)03-0800-06

Simulation of electric field modulated by silicon-microstructure during non-adiabatic near-field optical etching process

Sun Xiaoyan^{1,2}, Shen Zhengxiang^{1,2}, Tong Guangde^{1,2,3}, Zhang Jinlong^{1,2}, Wang Zhanshan^{1,2}

- (1. Key Laboratory of Advanced Micro-structure Materials, Ministry of Education, Shanghai 200092, China;
2. Institute of Precision Optical Engineering, School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China; 3. Science and Technology on Electromagnetic Scattering Laboratory, Shanghai Institute of Radio Equipment, Shanghai 200092, China)

Abstract: How to reduce the micro-defects of supersmooth optical surface is one of the research hotspots of manufacturing technology of ultra-precision optical element. A kind of novel precision optical fabrication method called non-adiabatic near-field optical induced smoothing surface microstructure was introduced to remove the surface scratches and digs after conventional polishing process. After establishing the geometry models of microstructures on supersmooth surfaces of silicon, the electric field excited by microstructure under the irradiation of 532 nm laser was numerical simulated by finite difference time domain (FDTD). From the comparison of the maximum intensity of the electric field

收稿日期: 2013-07-12; 修订日期: 2013-08-16

基金项目: 国家自然科学基金(11105099, 61205124, 61235011); 科技部国家重大科学仪器设备开发专项(2012YQ04016403)

作者简介: 孙晓雁(1987-), 女, 硕士生, 主要从事光学加工及仿真模拟等相关方面研究。Email: sunxiaoyan0405@126.com

导师简介: 沈正祥(1980-), 男, 副教授, 博士生导师, 主要从事先进光学制造和检测技术及光学设计等方面研究。

Email: shenzx@tongji.edu.cn

excited by the microstructure with different sizes, it can be seen that the maximum of local electric field intensity approximately increase linearly with the scale of the microstructure increase. It also shows an increasing trend with gradient of microstructure increase while the peak value is less than 25.5 nm. The physics map of the smoothing of microstructure on silicon surface is described by the numerical simulation of electric field modulated by microstructure under laser irradiation, which gives a way to explain the non-adiabatic near-field optical etching process.

Key words: near-field optics; ultra-smooth; finite difference time domain; electric field simulation; photochemical reaction

0 引言

现代光学系统对光学元件的表面质量提出了越来越严格的要求。如超高精度激光陀螺^[1]、引力波探测系统^[2]以及近期比较热门的光腔衰荡光谱测量系统^[3]中超低损耗元件要求基板表面粗糙度均方根值达到 0.5 nm 以下,2004 年,美国 REO 公司^[4]在粗糙度为 0.052 nm 的光学表面上制备了 632.8 nm 超低损耗反射镜。高功率激光系统元件的表面缺陷和亚表面缺陷能够调制局部的电磁场,提供吸收污染源,增强对激光能量的吸收,容易发生激光诱导损伤从而降低激光损伤阈值^[5-6]。短波光学系统对表面粗糙度、表面缺陷和亚表面损伤也有很高的要求,如反射式 x 射线微聚焦系统的研究中,高精度反射元件表面几十微米至几十毫米空间波长的面形误差和高频表面粗糙度直接影响到焦斑尺寸的缩小和元件的反射率。日本大阪大学和 Spring-8 同步辐射共同开发了多种超精密表面加工技术,获得了全空间频率表面误差小于 RMS 0.2 nm 的超精密表面,并应用在 BL29XUL 光束线上的掠入射 Kirkpatrick-Baez 微聚焦系统中,已经在 15 keV 能区获得了 25 nm 和 10 nm 的聚焦光斑^[7-9]。

因此,如何进一步降低超光滑光学元件表面粗糙度,减少表面缺陷,是现代超精密光学元件制作技术研究的热点之一。

目前超光滑加工方法大致可以分为改进的传统抛光法和新型场效应抛光两大类。其中改进的传统抛光法包括浴法抛光、浮法抛光和 Teflon 抛光等,我国的超光滑加工研究主要是基于传统化学机械抛光方法的改进和发展,关注在常规抛光机上进行辅料和工艺研究,包括抛光盘材料和配方、抛光磨料粒

度、分布与筛选、抛光磨料供给方式和抛光时间等方面,但抛光本质还是以抛光磨料细微颗粒对工件进行磨削去除材料,由于磨料颗粒尺度的限制,难以获得表面粗糙度小于 RMS 0.2 nm 的超光滑表面,且磨料颗粒的机械作用容易在表面留下精细划痕。新型场效应抛光包括离子束抛光^[9]、磁流变抛光^[10]、激光抛光^[11]和弹性发射加工^[12]等。近年来,哈尔滨工业大学、西安工业大学、国防科学技术大学等开展了磁流变抛光技术为代表的超光滑表面加工方法,但过程中必然存在的物理加载还是容易导致表面残余弱应力及表面晶格错位的发生。

澳大利亚 G.Wysocki,S.T.Dai^[13]于 2001 年最先提出非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构方法,作为一种激光辅助的化学反应纳米加工方法,完全避免了物理机械摩擦,而且作用的激光能量小,对基板的物理加载也很小,是一种超精密的表面材料去除方法。东京大学的 Motoichi Ohtsu 一直专注于非绝热的近场光学诱导平滑硅表面微结构实验相关方面,于 2005 年对其光分解过程进行研究提出了 EPP 模型^[14],于 2013 年提出 DPNP 模型假说,这两种模型都有对反应的本质进行深入探讨,但对理论物理模型中核心的表面微结构在激光作用下的局域电场增强尚未开展深入研究。文中首先建立表面微结构平滑和修饰的物理模型解释其物理过程,其次采用时域有限差分法对激光辐射作用下的硅表面微结构电场调制进行模拟,为探索微结构平滑的物理过程提供了有力支持。

1 非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构的物理模型

非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构是基于

激光作用下的选择性光化学反应。以 Cl_2 气环境下 Si 光学表面化学反应为例,光学表面置于真空室中,不断充入 Cl_2 ,由于 Cl_2 的吸收带边沿能量 E_g 相当于激光波长 400 nm 所产生的能量,为了避免 Cl_2 分子的气相分解,因此选择略大于 400 nm 的激光波长^[15-17]。此外,在光子与 Si 光学表面相互作用的过程中,Si 的带隙能量为 1.1 eV,相当于波长 707 nm 的激光波长,且随温度的递增而减小。当光子能量略大于带隙能量时,价带中电子吸收光子跃迁到导带,形成电子空穴对^[18-19]。

如图 1(a)所示,当选用波长为 532 nm 的连续激光入射于 Si 光学表面,激光诱导表面微结构附近产生光学近场,光学近场包含两个分量,一个分量能够向远场传播,另一个分量局限于物体表面不能传播就是所谓的隐矢量^[20]。图 1(b)中 Cl_2 分子在较小光子能量的作用下变为氯的自由基;Si 光学表面受热激发价带电子跃迁到导带形成电子空穴对,此时表面原子从基态变为激发态。一方面,光电子转移到氯的自由基从而形成氯离子扩散到 Si 晶体的晶格中与之发生化学反应,而且激光在表面诱导的电场可以使 Cl-扩散加强加快反应。另一方面,图 1(c)中光学近场场强是不确定的有一定的空间梯度,分子轨道的改变和分子的极化导致了分子的振动进而产生声子,此时入射光子、受激电子、声子构成虚拟的准粒子为光化学反应



提供能量来源(图 1(d))。

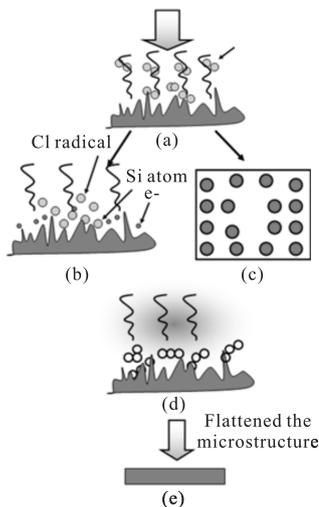


图 1 非绝热近场光学刻蚀过程的物理模型

Fig.1 Physical model of the non-adiabatic near-field optical etching process

而图 1(e)中一旦纳米级粗糙微结构消失,Si 光学表面附近场强分布均匀,不足以引起硅晶体晶格的振动、光学近场消失、反应也终将停止。因此,非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构是一种自发的光化学反应,而且在低能量激光作用下不会对光学表面产生较大的物理加载和表面残余弱应力,晶格也不容易发生错位,完全避免了机械摩擦,是一种新型的超精密表面材料去除方法。

2 表面微结构激发电场的数值模拟

2.1 表面微结构分析模型的建立

虽然对非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构的理论问题进行了研究,但由于表面微缺陷结构的复杂性,尚未对表面微结构在激光诱导作用下的电场分布特性以及表面微结构平滑过程中的物理图像进行清晰定量的描绘。文中采用时域有限差分法(FDTD)着重研究电场分布特性,用其清晰的物理图理解电场分布的复杂性。时域有限差分法是直接在时域中求解麦克斯韦方程的一种纯数值计算方法^[21],该方法使电场和磁场在时间顺序上交替抽样,抽样时间间隔彼此相差半个时间步,使麦克斯韦时域场旋度方程离散以后构成显式差分方程,从而在时间上迭代求解,而不需要矩阵求逆运算。

经过超光滑抛光的表面残留有部分微凸起、微凹坑等缺陷,以微凸起为例,为了提高计算效率,建立硅质正四棱锥的微结构模型,如图 2 所示,激光的

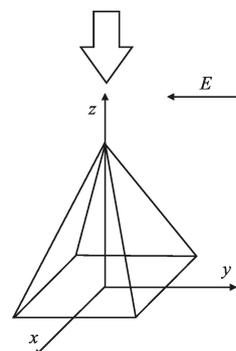


图 2 数值模拟的模型

Fig.2 Model of numerical simulation

入射波长为 532 nm、沿 y 方向偏振的均匀平面波从硅质的正四棱锥的正上方垂直入射,各电场分量分别为 $E_x = E_z = 0, E_y = -1 \text{ V/m}$ 。为了提高模拟精度,设

置的矩形网格间距为均匀而且足够小,其总数为 $110 \times 110 \times 110$ 。此外由于正四棱锥有 $x=0, y=0$ 两个对称平面且光源偏振方向沿 y 方向,为了节省计算时间笔者选择 x 方向边界条件为反对称形, y 方向为对称形,而 z 方向为了避免反射光的干扰采用完全匹配层(PML)吸收边界条件。

2.2 微结构特征尺寸对电场分布的影响

2.2.1 微结构尺寸大小对电场分布的影响

通过对纳米尺度微结构的电场模拟,可以获得不同尺度大小微结构在激光作用下所激发最大电场强度的变化规律。图 3 分别是图 2 模型中 $y=0$ 平面内的电场分布,此节所采用模型比例均为 $x=y=z$,图 3(a)模型中, x, y, z 的宽度都为 0.5 nm,而图 3(b)模型中, x, y, z 的宽度都为 1 nm,以此类推(a)~(g)分别为 0.5 nm, 1 nm, 3 nm, 5.625 nm, 11.25 nm, 17 nm, 22.5 nm。可以看出,激光诱导不同尺度大小的硅质微结构所激发的局域电场增强趋势相同,但色度条数值明显不同,即微结构尺寸大小对电场的影响是不同的。

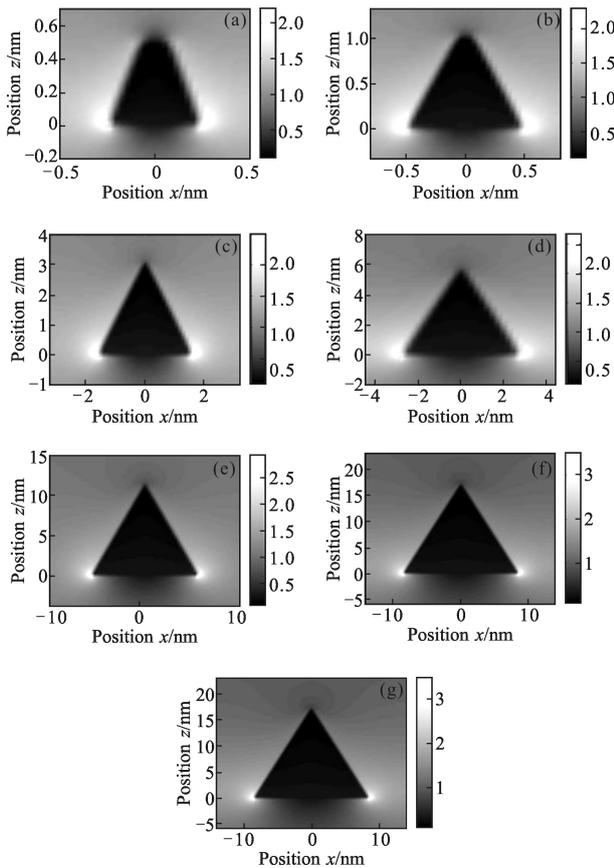


图 3 不同大小微结构的光学近场分布图

Fig.3 Near-field distribution of microstructure with different sizes

图 4 所示是硅质微结构尺寸和电场强度最大值的关系图,横坐标表示微结构的尺寸大小,即模型 $x=y=z$ 中的宽度 x ,纵坐标表示微结构在激光作用下所激发局域电场强度的最大值。由于非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构针对的是经过传统超光滑抛光后元件表面残留的纳米级表面微缺陷,所以笔者着重研究了 z 值从 0.5~22.5 nm 的变化规律。图 4 中可以看出,在基底峰谷值小于 25.5 nm 时,随着硅质正四棱锥尺度递增,激光诱导硅表面微结构最大电场强度约呈线性递增,进而说明在非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构中,一定范围内表面微结构尺寸越大,所激发电场强度越大,而该处的能量密度就越大,只要大于光化学反应的活化能即可发生反应从而达到材料的去除。如若微结构尺寸太小,所激发电场能量密度太小不足以引发光化学反应,则反应自动停止。

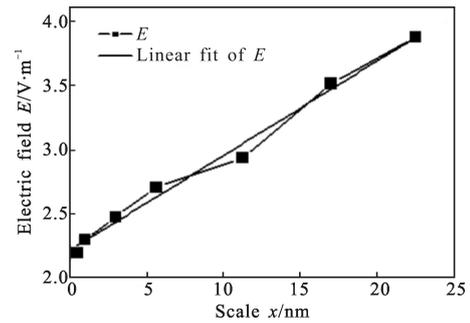


图 4 微结构尺寸和电场强度最大值的关系图

Fig.4 Relationship between the scale of microstructure and the maximum electric field intensity

2.2.2 四棱锥斜率对电场分布的影响

除了微结构的尺寸,微结构的形状对电场的分布也会产生影响。接着考察了硅质四棱锥的底边长度 x 和 y 分别为 90 nm 和 360 nm 并保持不变,改变四棱锥的高度后对电场的调制。由于非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构针对的是继抛光后光学表面残留的纳米级表面微缺陷,所以仍着重研究了 z 值从 0.5~22.5 nm 的变化规律。

图 5 所示是最大电场强度随四棱锥高度的变化关系,方块表示底边边长 90 nm,三角形表示底边边长 360 nm,横坐标是图 2 中四棱锥 z 轴的高度,纵坐标是激光作用下四棱锥微结构所激发局域电场强度的最大值。可以看到,四棱锥微结构所激发的电场强

度除与微结构尺寸大小相关外,不同的倾斜率对电场强度的影响也不同。

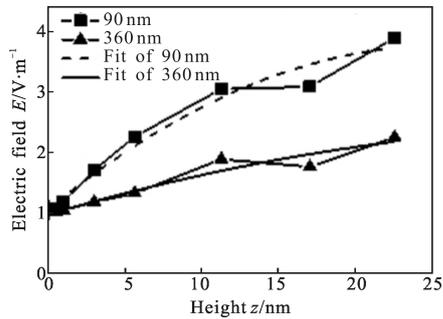


图 5 微结构高度和电场强度最大值的关系图

Fig.5 Relationship between the height of microstructure and the maximum of electric field intensity

横坐标高度的变化表示在一定范围内斜率的变化,明显看出在 22.5 nm 范围内,随倾斜率的增加,最大电场强度呈递增趋势,进而说明在非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构中,一定范围内表面微结构倾斜率越大,所激发电场强度越大,而该处的能量密度就越大,只要大于光化学反应的活化能即可发生反应从而完成材料的去除。如若微结构倾斜率太小接近超光滑,所激发电场能量密度太小不足以引发光化学反应则反应自动停止。

3 结论

文中建立了非绝热近场光学诱导平滑硅表面微结构的物理模型,基于时域有限差分法(FDTD)模拟了不同尺度及结构的硅质四棱锥微结构在激光辐照下所激发的电场分布,讨论了表面微结构特征尺寸和电场强度最大值的关系。在一定范围内,随微结构尺度递增,所激发的局域电场强度最大值约呈线性递增;随微结构倾斜率的递增,电场强度最大值也呈递增趋势。通过对激光诱导表面微结构调制电场的数值模拟,构建了硅表面微结构诱导平滑的物理图像,为描绘激光辐照下非绝热近场光学诱导平滑表面微结构的物理过程提供了有力的理论支持。

参考文献:

- [1] Sakharov V K. Model of lock-in in a ring laser and a semiconductor laser gyro[J]. *Optics Quantum Electronics*, 2011, 56: 1135-1141.
- [2] Accadia T, Acernese F, Antonucci F, et al. Performance of the Virgo interferometer longitudinal control system during the second science run[J]. *Astroparticle Physics*, 2011, 34: 521-527.
- [3] Matsugi A, Miyoshi A. Kinetics of the self-reactions of benzyl and o-xylyl radicals studied by cavity ring-down spectroscopy[J]. *Chem Phys Lett*, 2012, 521: 26-30.
- [4] George J, Knollenberg B. Dual ion beam sputtering deposition for low loss mirrors [J]. *Laser Focus World*, 2004, 40: 79-84.
- [5] Tesar A A, Brown N J, Taylor J R, et al. Subsurface polishing damage of fused silica: Nature and effect on laser damage of coated surfaces[C]//SPIE, 1990, 1441: 154-172.
- [6] Jörg Steinert, Stefan Gliech, Andreas Wuttig, et al. Advanced methods for surface and subsurface defect characterization of optical components [C]//SPIE, 2000, 4099: 290-298.
- [7] Mimura H, Yumoto H, Matsuyama S, et al. Efficient focusing of hard x rays to 25 nm by a total reflection mirror [J]. *Applied Physics Letter*, 2007, 90: 051903.
- [8] Mimura H, Handa S, Kimura T, et al. Breaking the 10 nm barrier in hard-X-ray focusing [J]. *Nature Physics*, 2010, 6: 122-125.
- [9] Kiontke S, Demmler M, Zeuner M, et al. Ion Beam Figuring (IBF) for high Precision Optics becomes affordable [C]// SPIE, 2010, 7786: 77860F.
- [10] Paul R D, Donald G, Stephen H, et al. System for magnetorheological finishing of substrates, US: US5951369A[P]. 1999-09-14.
- [11] Kristian H. Apparatus for modifying the surface of the eye through large beam laser polishing and method of controlling the apparatus[P]. US: US5683379A, 1997-11-04.
- [12] Mori Y, Yamauchi K, Endo K. Elastic emission machining [J]. *Precision Engineerings*, 1987, 9(3): 123-128.
- [13] Wysocki G, Dai S T, Brandstetter T, et al. Etching of crystalline Si in Cl₂ atmosphere by means of an optical fiber tip[J]. *Applied Physics Letters*, 2001, 79(2): 159-161.
- [14] Kawazoe T, Kobayashi K, Takubo S, et al. Nonadiabatic photodissociation process using an optical near fields[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2005, 122: 024715.
- [15] Yatsui T, Ohtsu M. Production of size-controlled Si nanocrystals using self-organized optical near-field chemical etchings[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(4): 043104-043104-3.
- [16] Naruse M, Yatsui T, Nomura W, et al. Analysis of surface roughness of optical elements planarized by nonadiabatic optical near-field etchings [J]. *Journal of Applied Physics*, 2009, 105(6): 063516-063516-4.
- [17] Takashi Y, Motoichi O. Nanophotonic fabrication in sub-nm

- scale[C]//SPIE, 2010, 7586: 75860D-1-75860D-8.
- [18] Zhu Xing. Near-field optical and near-field optical microscope [J]. *Journal of Peking University: Natural Science*, 1997, 33(3): 394-407. (in Chinese)
朱星. 近场光学与近场光学显微镜 [J]. 北京大学学报: 自然科学版, 1997, 33(3): 394-407.
- [19] Yatsui T, Nomura W, Naruse M, et al. Realization of an atomically flat surface of diamond using dressed photon-phonon etchings [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2012, 45(47): 475302.
- [20] Zhou Qing, Zhu Xin, Li Hongfu. Intensity distribution of probe in the near-field optical [J]. *Acta Physica Sinica*, 2000, 49(2): 210-214. (in Chinese)
周庆, 朱星, 李宏福. 近场光学中光纤探针的光强分布[J]. 物理学报, 2000, 49(2): 210-214.
- [21] Krug II J T, Sánchez E J, Xie X S, et al. Design of near-field optical probes with optimal field enhancement by finite difference time domain electromagnetic simulations [J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2002, 116: 10895.