

FEMTOSZEKUNDUMOS PUMPA-PRÓBA ELLIPSZOMETRIA

Csontos János^{1,2}, Pápa Zsuzsanna^{1,2}, Nagyillés Bálint¹, Tóth Zsolt³, Budai Judit^{1,2}

¹SZTE Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék, 6720 Szeged, Dóm tér 9., Magyarország

²ELI-HU Non-profit Kft, 6728 Szeged, Wolfgang Sandner utca 3., Magyarország

³SZTE Kísérleti Fizika Tanszék, 6720 Szeged, Dóm tér 9., Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.6>

1. Bevezetés

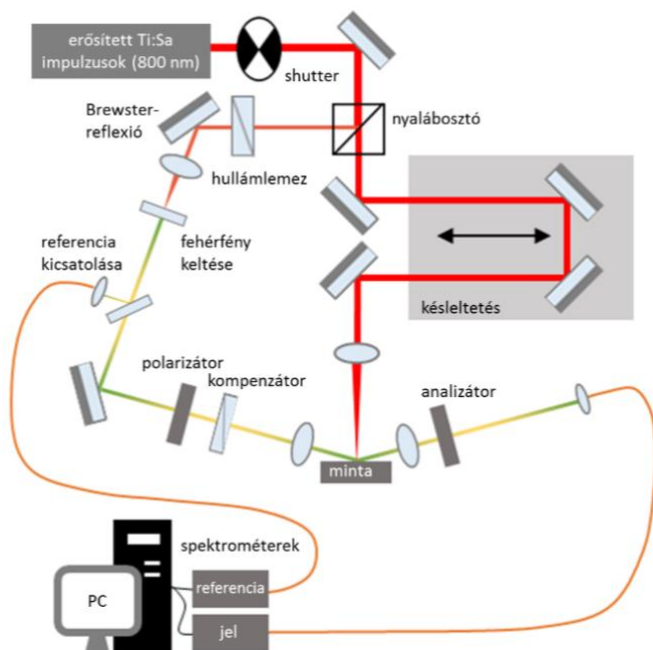
Különböző anyagok ultrarövid lézerimpulzusokkal történő besugárzása ultragyors időskálán bekövetkező változásokat eredményez a vizsgált anyag töltésrendszerében, illetve hőmérsékletében. Ezek valós idejű megfigyelése intenzíven kutatott terület, amelyhez általában az úgynevezett pumpa-próba módszereket alkalmazzák. Pumpa-próba mérés esetén a mintában egy pumpa impulzus előidéz valamilyen változást, amelyet az utána, adott időközéssel érkező próba impulzus térképez fel. A próba impulzus beérkezési idejét változtatva a pumpa impulzus által előidézett változás teljes időbeli lefutásáról képet kaphatunk. Leggyakrabban a vizsgált minta abszorpciós, illetve reflexiós tulajdonságainak változásaiból következtetnek a lejátszódó folyamatokra, ezek azonban általában csak a vizsgált anyag optikai tulajdonságaiban bekövetkező változásokat adják meg, míg a dielektromos függvény tényleges értékéről nem tudnak információt szolgáltatni. Az elmúlt évekből csak elvétve találunk olyan eredményeket, ahol a spektroszkópiai ellipszometriát – amellyel nagy pontossággal lehet meghatározni különböző anyagok komplex dielektromos függvényét - ötvözték a pumpa-próba módszerrel [1-4].

Ebben a cikkben ismertetjük az általunk épített titán-zafír lézere alapozott pumpa-próba ellipszométer működését és alkalmazhatóságát germánium szeletek vizsgálatával. Bemutatjuk a germánium optikai válaszána rövidimpulzusú gerjesztés hatására bekövetkező változásait 500 fs időfelbontással, és a germánium sávszerkezetét figyelembe véve magyarázatot adunk a megfigyelt tendenciákra.

2. Kísérleti elrendezés

A kísérlet során egy titán-zafír alapú erősítő 0,6 mJ energiájú, 800 nm-es központi hullámhosszú, 30 fs-os lézerimpulzusait használtuk. A kísérleti elrendezés az 1. ábrán látható, melynek első eleme egy mechanikus zár (shutter), ami az impulzusok kivágásáért volt felelős. A lézernyalábot ezt követően két részre osztottuk egy nyalábosztó segítségével. A nyaláb kisebbik hányada a próba karba haladt tovább, a fő részét pedig a kísérleti elrendezés pumpa karjába továbbítottuk. A próba karban egy félhullámlemez és egy Brewster-szögben elhelyezett üveglap segítségével csökkentettük a nyaláb intenzitását. Ezzel az elrendezéssel finoman lehetett hangolni a próba karba tovább haladó impulzusok energiáját, amely az impulzusok spektrális kiszélesítése, az úgynevezett fehérfénykeltés során volt fontos. A nyalábggyengítést követően egy 20 cm-es fókusztávolságú lencse segítségével, 2 mm vastag ömlesztett kvarcra fókuszáltuk a nyalábot. A kvarcban önfázismoduláció lépett fel, amely fehérfényt azaz spektrális kiszélesedést formájában jelentkezett a kvarc lap után. A spektrálisan kiszélesedett nyaláb spektruma nagyjából 450 nm-től egészen 1100 nm-ig terjedt. Mivel a keltő impulzusok intenzitása jóval nagyobb, mint a fehérfény intenzitása, így a kísérlet során az elnyomja a hasznos mérőjelet. Emiatt a nyaláb kollimálását követően dikroikus szűrő segítségével kiszűrtük a keltő jelet, így a hasznos jel, tehát a próbajel spektrálisan 450 nm-től 720 nm-ig terjedt. A mérések során folyamatosan monitoroztuk a próba jel spektrumát egy, a nyaláb útjába helyezett üveglap elülső

felületéről reflektálódott nyaláb segítségével. Ennek a jelnek a spektrumát egy OceanOptics QEPro spektrométer segítségével rögzítettük, és a mérések kiértékelése során referenciajelként használtuk fel.



1. ábra: A pumpa-próba ellipszométer sematikus ábrája.

A próbajelét ezt követően az ellipszométer karjába továbbítottuk, ahol áthaladt egy polarizátoron, és ezt követően a beesési síkra merőleges, tehát s-polarizált állapotúvá vált. A polarizátort egy akromatikus negyedhullámlemez követett, melynek az optikai tengelyét a mérések során 0° és 350° között állítottuk, így változtatva a jel polarizációs tulajdonságát. A próbajelét egy $3\times$ nagyítású optikai mikroszkóp segítségével a germánium minta felszínére fókuszáltuk, majd a reflektálódott fényt egy $2\times$ nagyítású objektívvel kollimáltuk. A mintát elhagyó nyalábot egy további polarizátoron (analizátor) vezettük keresztül. A polarizációs iránya ennek az elemnek a beesési síkkal 45° -os szöget zárt be. A mintáról reflektálódó jelet egy optikai szálba vezettük és a spektrumát egy OceanOptics QE65000 spektrométerrel rögzítettük.

Az elrendezés másik ága a pumpa karnak nevezett rész, mely a nyalábosztót követően késleltető ágból, azaz egy finomeltolóra szerelt saroktükrökből, valamint egy 150 mm -es fókusz távolságú akromatikus fókuszáló lencséből áll. Az eltoló finomsága $10\ \mu\text{m}$ volt, mellyel így nagyjából 65 fs pontossággal lehetett beállítani a pumpa jel késleltetését. A fókuszált pumpa nyaláb és így a gerjesztett folt átmérője a germánium felületén $\sim 600\ \mu\text{m}$ volt.

2.1 Adatvisszafejtés

Az ellipszometriai mérések a mintáról visszaverődő fény polarizációs állapotában bekövetkező változások detektálásán alapulnak. Ennek méréséhez folytonos megvilágítás esetén a kompenzátort forgatják mérés közben, amely révén a mintát folytonosan változó polarizációs állapotú fény világítja ki. A mintáról visszaverődő fénynek csak az a része éri el a detektort, amit az adott szögben álló második polarizátor, az analizátor átenged. A detektorra eső, ily módon változó intenzitás modulációs amplitúdójából lehet következtetni arra, hogy a minta milyen módon változtatja meg a rá eső fény polarizációs állapotát. Impulzusüzemű lézerrel történő kivilágítás esetén egy kvázi-forgókompenzátoros mérést valósítottunk meg oly módon, hogy a minta adott pontjára eső adott számú lézerimpulzus jelének átlagolása után 10° -kal elforgattuk a kompenzátort, és egy érintetlen területen végeztük el az újabb besugárzást. Ezt ismételtük addig, amíg a kompenzátor teljes fordulatot tett. A felvett pontokból kirajzolódó modulált intenzitást a következő formulával lehet leírni:

$$I(C) = K \cdot [A_0 + A_2 \cdot \cos(2 \cdot C) + B_2 \cdot \sin(2 \cdot C) + A_4 \cdot \cos(4 \cdot C) + B_4 \cdot \sin(4 \cdot C)],$$

ahol C a kompenzátor szögállása, A_0 , A_2 , B_2 , A_4 és B_4 az ún. Fourier-együtthatók illesztésből meghatározhatók. Ezek segítségével, és a kompenzátor amplitúdó-áteresztési és fázistolási paramétereit (x_c , y_c , and z_c) figyelembe véve felírhatjuk az N , C és S mennyiségekre vonatkozó összefüggéseket:

$$N = \cos(2\Psi) = \frac{2 \cdot A_4}{(y_c - 1) \left(A_0 + A_4 \frac{y_c + 1}{y_c - 1} \right)} = \frac{2 \cdot A_4}{(y_c - 1)M}; \quad C = \sin(2\Psi) \cos(\Delta) = -\frac{2B_4}{(y_c - 1)M} \text{ és}$$

$$S = \sin(2\Psi) \sin(\Delta) = \frac{B_2}{z_c \cdot M} - \frac{2B_4 \cdot x_c}{z_c \cdot M(y_c - 1)},$$

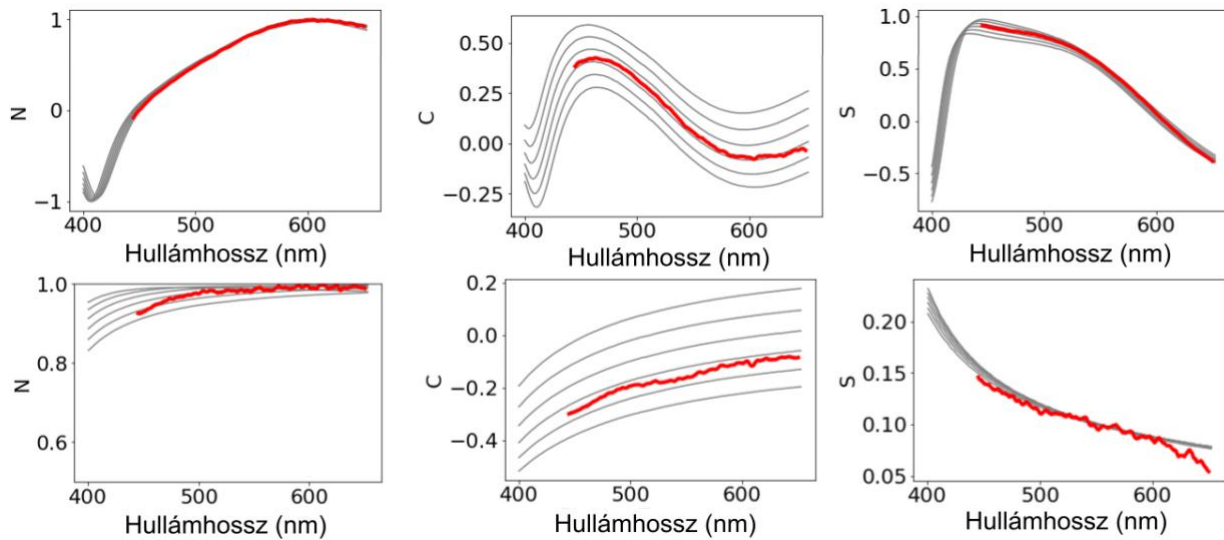
amelyekből az ellipszometriában általában használt Ψ és Δ spektrumok a következő képpen adódnak:

$$\Psi := \frac{1}{2} \cdot \tan^{-1} \left(\frac{\sqrt{C^2 + S^2}}{N} \right) \text{ és } \Delta := \tan^{-1} \left(\frac{S}{C} \right).$$

Az így kapott spektrumok egyértelműen jellemzik a minta polarizációs állapotra gyakorolt hatását (Ψ a mintára eső fény egymásra merőleges térerősség-komponenseinek amplitúdójára gyakorolt hatását, Δ pedig a köztük előidézett fázisváltozást jellemzi), és segítségükkel a mintát jellemző dielektromos függvény értékei modellezési eljárással meghatározhatók.

2.2 Kalibráció

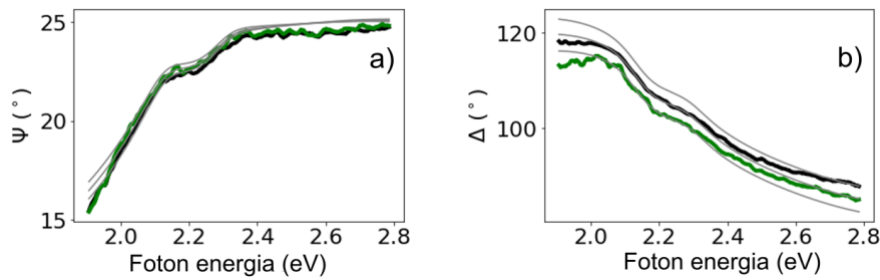
A kísérleti elrendezéssel, csak a próbaimpulzusok használatával rögzített N, C és S adatsorokat egy kereskedelmi forgalomban kapható ellipszométerrel (Woollam M2000) mért adatsorokkal összevetve elvégeztük az eszköz kalibrációját. A 2. ábrán a beesési szög kalibrációja látható egy 270 nm-es SiO₂ réteggel bevont Si hordozó, és egy natív oxidréteggel bevont Si hordozó esetén.



2. ábra: Beesési szög kalibrációja 270 nm-es SiO₂ réteggel (felső sor) és natív oxidréteggel (alsó sor) bevont Si hordozó esetén. A piros görbék a pumpa-próba elrendezéssel mért adatsort mutatják, a szürke görbék pedig a kereskedelmi forgalomban kapható ellipszométerrel mért adatok. A konvencionális mérések 74,6°, 74,8°, 75°, 75,2° és 75,4° beesés mellett történtek. A görbék együtt futásából megállapítható, hogy az időbontott mérések a tervezett 75° beesési szög mellett történnek.

3. Eredmények

A kalibrált készülékkel ezután megmértük az ellipszometriai szögek spektrumát a germánium szeleteken a pompa és próba impulzus közötti időközést változtatva. Először a besugárzás előtt és utána felvett ellipszometriai spektrumok összevetését végeztük el a minta különböző területeit különböző számú impulzussal besugározva. Ebből meghatároztuk azt az impulzusszámot, amit egy adott területen maradandó változások előidézése nélkül tudunk alkalmazni. A 3. ábra azt mutatja, hogy a besugárzás előtti (fekete) és besugárzás utáni (zöld) ellipszometriai spektrumok a Ψ esetén teljesen átfednek, míg a Δ esetén csak kismértékben térnek el kismértékű felületi változásra utalva. A szürke görbék ugyanezen területeken a Woollam M2000 ellipszométerrel rögzített spektrumok.



3. ábra: A germánium mintán lézeres kezelés előtt (fekete) és után (zöld) rögzített ellipszometriai spektrumok.

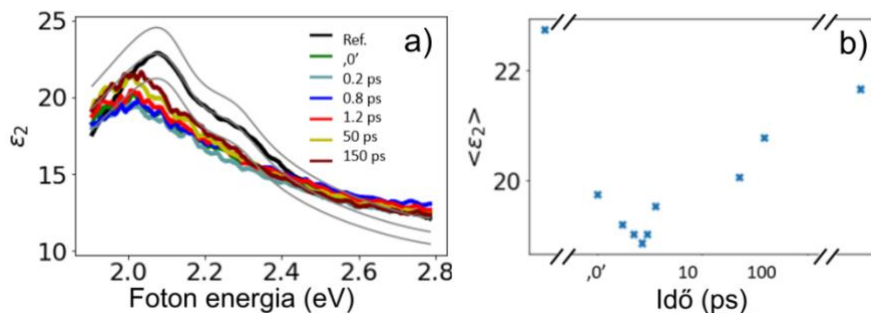
Az ellipszometriai spektrumok közvetlenül átszámolhatók ún. pszeudó dielektromos állandóvá a következő összefüggés alapján:

$$\varepsilon = \sin^2 \theta_1 \cdot \left[1 + \tan^2 \theta_1 \cdot \left(\frac{1 - \rho}{1 + \rho} \right)^2 \right],$$

ahol θ_1 a beesési szög, ρ pedig a mintára jellemző komplex reflexiók együttható, amely az ellipszometriai szögekből a következő képpen számolható:

$$\rho = \tan \Psi \cdot e^{i\Delta}.$$

A pszeudó dielektromos állandó tömb anyagok esetén a vizsgált minta dielektromos állandójának felel meg, rétegszerek esetén a rétegszerek tulajdonságait is magában hordozza. A mért ellipszometriai adatsorokat átváltva pszeudó dielektromos állandóvá megállapítható, hogy a lézeres gerjesztés hatására a kristályos germánium sáv-sáv átmeneteire jellemző éles csúcsok [5] a gerjesztést követő 1-2 ps-ban elmosódottabbá válnak, és a görbék csak ~száz ps után nyerik vissza eredeti alakjukat (4. a) ábra).



4. ábra: a) A különböző késleltetési időkhöz tartozó ε_2 spektrumok. b) A ε_2 változásai 2,1 eV fotonenergián (590 nm-es hullámhosszon).

Az elmosódottság mellett a sáv-sáv átmenethez köthető abszorpciós sávok amplitúdója is lecsökken. Ezt szemlélteti a 4. b) ábra, ahol a 2,1 eV-os fotonenergián megfigyelhető csúcs amplitúdója látható a fotonenergia függvényében. Az első néhány száz femtoszekundum alatt a kiválasztott csúcs amplitúdója gyorsan lecsökken, majd kismértékben nő, de a kiindulási értékre csak több mint 100 ps után tér vissza. Mivel a dielektromos állandó képzetes része az állapotsűrűséggel van kapcsolatban, a csúcs amplitúdójának csökkenése a hozzá köthető sáv-sávátmenetek valószínűségének lecsökkenését jelzi összefüggésben azzal, hogy a lézeres gerjesztés hatására a vezetési sávban elérhető kötött elektronok száma lecsökken, miközben a szabadelektron koncentráció megnövekszik. A szabadelektronok koncentrációja csak hosszú idő alatt (~ 100 ps) esik vissza a mérhető mérték alá.

4. Összefoglalás

A pumpa-próba ellipszometriai elrendezéssel a germánium optikai tulajdonságaiban lézeres besugárzás hatására létrejövő változásokat vizsgáltuk. A mért ellipszometriai spektrumokból meghatároztuk a germánium dielektromos állandóját, és ennek változásait a sáv-sáv átmenetnek megfelelő fotonenergián. A megfigyelt változások a lézerpulzus által gerjesztett szabad elektronok megjelenésével magyarázhatóak, így a változás dinamikája alapján megállapítható, hogy a szabad elektronok a gerjesztés utáni első pikoszekundum alatt megjelennek, és koncentrációjuk csak 100 ps után esik vissza.

5. Köszönetnyilvánítás

A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg. EFOP-3.6.2-16-2017-00005-*Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben*. Csontos János köszönettel tartozik az Emberi Erőforrások Minisztériumának, az általuk kiírt Nemzeti Tehetség Program keretében elnyert (NTP-NFTÖ-19-B-0290) ösztöndíjért.

Irodalom

- [1] H. Yoneda, H. Morikami, K. Ueda, R. M. More, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 075004 (2003).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.91.075004>
- [2] S. Rapp, M. Kaiser, M. Schmidt, H. P. Huber, *Opt. Exp.* **24**, 17572 (2016).
<https://doi.org/10.1364/OE.24.017572>
- [3] J. Csontos, Z. Tóth, Z. Pápa, B. Gábor, M. Füle, B. Gilicze, J. Budai, *App. Surf. Sci.* **421**, 325 (2017).
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2017.03.186>
- [4] T. Pflug, J. Wang, M. Olbrich, M. Frank, A. Horn, *Appl. Phys. A* **124**, 116 (2018).
<https://doi.org/10.1007/s00339-018-1550-4>
- [5] S. Espinoza, S. Richter, M. Rebarz, O. Herrfurth, R. Schmidt-Grund, J. Andreasson, and S. Zollner *Appl. Phys. Lett.* **115**, 052105 (2019).
<https://doi.org/10.1063/1.5109927>