

## Формирование протяженных периодических микроструктур при “точечном” облучении золотой пленки фемтосекундными лазерными импульсами

Б. Н. Миронов\*, С. А. Асеев<sup>1)</sup>, В. С. Макин<sup>+</sup>, С. В. Чекалин<sup>1)</sup>, В. С. Летохов\*

\* Институт спектроскопии РАН, 142190 Троицк, Московская обл., Россия

<sup>+</sup> Научно-исследовательский институт комплексных испытаний оптико-электронных приборов и систем 188540 Сосновый Бор, Ленинградская обл., Россия

Поступила в редакцию 3 июля 2008 г.

С помощью фемтосекундного лазерного излучения на тонкой золотой пленке сформированы протяженные периодические микроструктуры, длина которых на порядок превышает характерный размер области облучения. Регистрация фотоионов золота, образующихся в процессе микроструктурирования, дает возможность высокочувствительной диагностики этого явления в режиме “on-line”.

PACS: 61.80.Ba, 68.35.-p, 72.30.+q, 73.20.Mf, 79.20.Ds

В настоящее время остаются весьма актуальными и востребованными исследования возможностей микроструктурирования различных твердых материалов остро сфокусированным фемтосекундным лазерным излучением [1], позволяющим при умеренных энергиях лазерных импульсов обеспечивать достаточно высокую интенсивность электромагнитного поля. При этом сам процесс обычно происходит непосредственно в фокальном пятне, а для создания протяженных, вытянутых в пространстве структур осуществляется перемещение лазерного пучка относительно образца [2]. В этой связи нахождение условий, при которых формирование достаточно протяженных микроструктур не требует сканирования лазерного пучка относительно материала, приобретает особую ценность.

Для визуализации возникающих микро- и наноструктур используются несколько различных подходов [3]. Наиболее распространенным и безусловно самым простым является метод оптической микроскопии. Однако возможности такого способа ограничены наблюдением структур с характерными размерами, превышающими  $\sim 0.3$  мкм. В качестве альтернативных высокочувствительных методов диагностики можно привести электронную микроскопию, а также атомно-силовую микроскопию [2, 3]. Отметим, что подобная диагностическая процедура обычно осуществляется после того, как процесс облучения материала высокоинтенсивными лазерными импульсами закончился.

Вместе с тем, фемтосекундное лазерное структурирование твердого тела в вакууме при высоких интенсивностях излучения сопровождается эмиссией ионов из облучаемой поверхности, регистрация которых может осуществляться в режиме “on-line”. Чувствительность такого метода определяется вероятностью фотоэмиссии ионов из поверхности, а также эффективностью их регистрации, которая может достигать уровня единичных ионов [4]. Целью данной работы является исследование возможности создания на металлической пленке микроструктур с характерной длиной, существенно превышающей размер области облучения, а также использование фотоионной диагностики для нахождения необходимых условий для этого процесса.

Эксперимент выполнен в вакуумной камере, укомплектованной детектором заряженных частиц (рис.1). Безмасляный вакуум выше  $10^{-7}$  мм рт.ст. создается с помощью турбомолекулярного насоса “Varian”. Детектор с диаметром активной зоны 15 мм представляет собой вторичный электронный умножитель (ВЭУ-2), сигнал с которого регистрируется запоминающим осциллографом “Tektronics”.

Металлическая пленка нанесена на призму из плавленого кварца, а лазерное излучение подводится к металлу со стороны диэлектрика. Подобная геометрия ранее использована для получения фотоэлектронных пакетов ультракороткой длительности [5–7]. Боковая грань подложки из плавленого кварца представляет собой равнобедренный прямоугольный треугольник с длиной гипотенузы 20 мм. Толщина призмы равна 10 мм. Гипотенузная грань длиной 20 мм и шириной 10 мм (рис.1) покрыта слоем золота

<sup>1)</sup> e-mail: isanfemto@yandex.ru, chekalin@isan.troitsk.ru

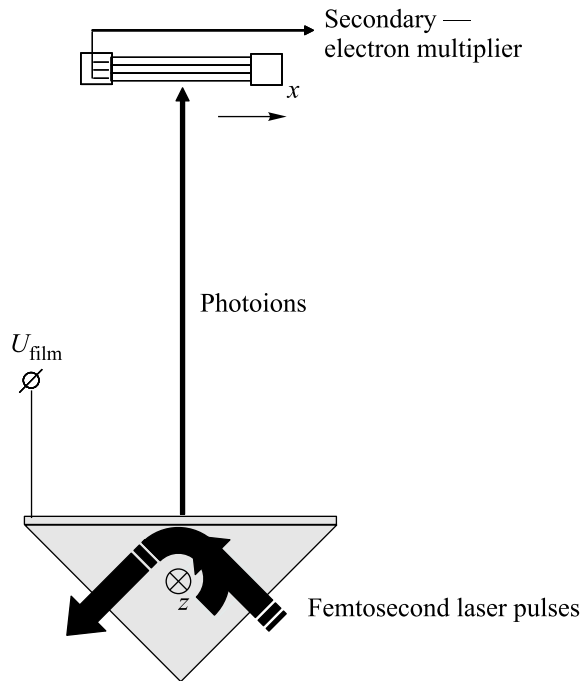


Рис.1. Схема экспериментальной установки. Ось  $z$  ортогональна плоскости рисунка и оси  $x$

толщиной  $\delta \sim 30$  нм, нанесенным с помощью магнетрона в отдельной вакуумной камере в аргоновой среде с парциальным давлением  $\sim 10^{-3}$  ммрт.ст.

Призма закреплена на манипуляторе, позволяющем вращать ее вокруг оси  $z$  (рис.1). Расстояние от металлического покрытия до ВЭУ  $L \approx 150$  мм. Для транспортировки фотоионов к детектору на пленку прикладывается положительный электрический потенциал  $U_{\text{film}}$ . При этом ускорение фотоионов до кинетической энергии в несколько кэВ обеспечивает условия для их эффективной регистрации [8]. Основные измерения сделаны при  $U_{\text{film}} = 4$  кВ. Первый диод ВЭУ находился под электрическим потенциалом  $U_{\text{det}} \approx -3.2$  кВ.

В эксперименте использовано линейно поляризованное лазерное излучение с длиной волны  $\lambda = 400$  нм, длительностью импульса  $\tau \approx 70$  фс и частотой следования импульсов  $f = 1 \div 1000$  Гц, получаемое с помощью лазерной системы “Spectra-Physics/Newport” и нелинейного кристалла ВВО. Для уменьшения энергии лазерных импульсов в эксперименте использован набор нейтральных фильтров “Newport”. Лазерные импульсы с энергией  $\epsilon \approx 1.5$  мкДж фокусировались на золотую пленку линзой с фокусным расстоянием  $F \approx 140$  мм. При диаметре фокального пятна  $d \approx 40$  мкм интенсивность достигает величины  $I \approx 2 \cdot 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>.

Лазерное излучение заводилось через боковую грань призмы и падало на границу раздела металл – диэлектрик под углом к нормали  $\varphi$  (начальный угол  $\varphi \cong 45^\circ$ ). Вращением призмы вокруг оси  $z$  подбирался угол  $\varphi$ , при котором возникал фотоионный сигнал на детекторе, оказавшийся равным  $\varphi \cong 43.9^\circ \pm 0.4^\circ$ . Как видно из рис.2, фотоионный масс-спектр наря-

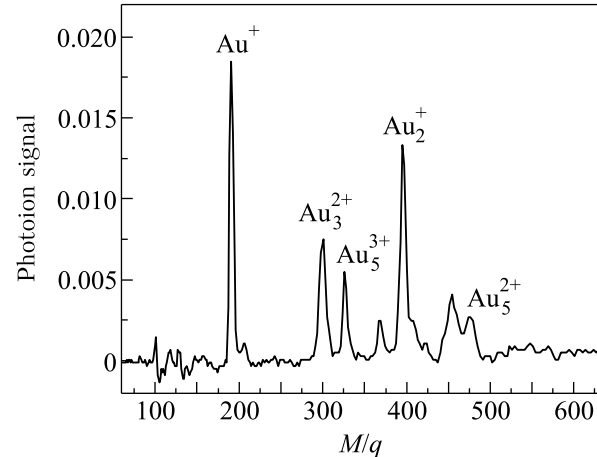


Рис.2. Времяпролетный масс-спектр, регистрируемый при облучении золотой пленки фемтосекундными 400-нм лазерными импульсами с  $I \approx 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>

ду с атомарными ионами ( $\text{Au}^+$ ) содержит также заряженные кластеры золота. При вращении призмы в наших условиях лазерный луч ( $f = 1$  кГц,  $I \sim 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>) перемещался по поверхности пленки со скоростью  $\sim 1$  мм/с. После облучения на золотой пленке наблюдались периодические структуры с пространственным периодом  $\cong 9$  мкм (рис.3). Интересно

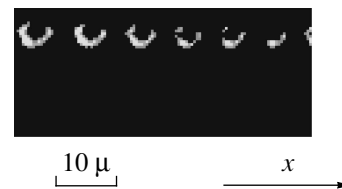


Рис.3. Фотографический снимок периодических структур, возникающих на золотой пленке при облучении материала фемтосекундными лазерными импульсами и вращении призмы относительно оси  $z$ . Белым цветом выделены “вспученные” участки золота, внутри которых произошел вынос металла

отметить, что пространственный период практически не зависел от частоты следования  $f$ , что проверялось путем уменьшения  $f$  от 1 кГц до 100 Гц.

В следующей серии экспериментов также подбирался угол падения  $\varphi$ , при котором появлялся фото-

ионный сигнал, после чего лазерное излучение перекрывалось, а вся призма сдвигалась с помощью манипулятора по оси  $z$  (ортогонально плоскости рис.1 и оси  $x$ ) на расстояние  $\sim 1$  мм. Затем в течение приблизительно 10 с новый участок пленки облучался сфокусированными 1 кГц лазерными импульсами с пиковой интенсивностью на уровне  $10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> в условиях, когда никаких перемещений образца относительно лазерного пучка не происходило. Фактически в этом случае осуществлялось “точечное” облучение материала фемтосекундными лазерными импульсами. В результате на золотой пленке возникло вытянутое вдоль оси  $x$  микроповреждение с длиной  $\ell \cong 500$  мкм (рис.4) и характерной шириной

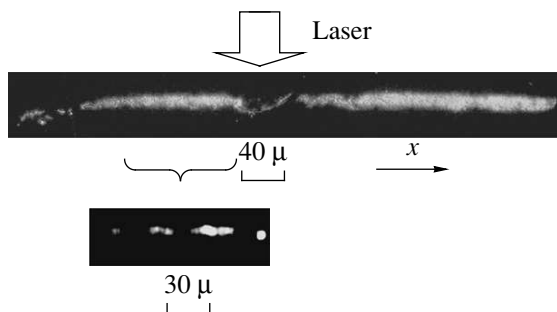


Рис.4. Микроструктурирование золотой пленки при “точечном” облучении материала фемтосекундными лазерными импульсами. “Точка” облучения указана стрелкой. На нижней вставке с измененным контрастом показано наличие квазипериодической микроструктуры с пространственным периодом около 30 мкм

$\zeta \cong 20$  мкм. Важно подчеркнуть, что в этом случае величина  $\ell$  более чем на порядок превышала размер облучаемой области, приблизительно равный 40 мкм. Анализируя полученные данные, можно убедиться, что они содержат квазипериодическую микроструктуру с пространственным периодом  $\cong 30$  мкм.

Отметим, что в обоих случаях (рис.3 и 4) полученные микроповреждения оказываются вытянутыми вдоль проекции волнового вектора  $\mathbf{k}$  ( $|\mathbf{k}| = 2\pi/\lambda$ ) на плоскость металлической пленки, что соответствует оси  $x$ , а также содержат квазипериодические микроструктуры с близкими по порядку величин пространственными периодами. Эти данные получены при  $s$ -поляризованном лазерном излучении (поляризованном ортогонально плоскости падения). При “точечном” облучении пленки  $p$ -поляризованным излучением протяженные микроструктуры, подобные данным на рис.4, не создавались, а наблюдались лишь “точечные” микроповреждения с характерным раз-

мером (около 40 мкм), близким к диаметру фокального пятна.

Одним из результатов является корреляция между появлением фотоионного сигнала и формированием микроповреждений. Такой метод пригоден для нахождения оптимальных условий облучения и обладает рекордной чувствительностью. Способность регистрировать сигнал на уровне единичных ионов позволяет в пределе диагностировать пикоструктурирование твердых материалов под действием интенсивных лазерных импульсов.

Обратившись к фотоионному сигналу (рис.2), заметим, что полуширина фотоионного пика, соответствующего  $M/q \approx 200$ , во времяпролетном масс-спектре  $\Delta\tau \cong 30$  нс. Это значение определяется начальным разбросом в кинетической энергии  $\Delta\epsilon$ , различными углами вылета фотоионов относительно поверхности пленки  $\Delta\alpha$ , а также шириной аппаратной функции  $\Delta\tau_{\text{det}}$ . В нашем случае  $\Delta\tau_{\text{det}} \cong 10$  нс. Оценка возможных  $\Delta\epsilon$  и  $\Delta\alpha$  проведена с помощью компьютерного моделирования электростатического поля на основе решения уравнения Лапласа для конфигурации электродов, задействованной в эксперименте, и определения траектории движения ионов. Как показывает моделирование, основной вклад в  $\Delta\tau$  вносит разброс в начальной энергии фотоионов, и для того, чтобы обеспечить  $\Delta\tau \cong 30$  нс, он должен составлять величину приблизительно  $\Delta\epsilon \geq 1$  эВ. На наш взгляд, причиной такого разброса  $\Delta\epsilon$  является образование плазмы на металлической пленке, сопровождающее процесс структурирования.

Укажем на возможные причины формирования протяженных ( $\ell \gg d$ ) треков излучения, фиксирующихся в виде квазипериодических микроструктур разрушения пленки золота. Они могут быть связаны с возбуждением следующих типов распространяющихся в направлении оси  $x$  поверхностных электромагнитных возбуждений.

1) Генерация нелинейного поверхностного плазмон-поляритона ТЕ-типа (напряженность электрического поля ортогональна плоскости падения лазерного излучения) на границе раздела металл – вакуум.

2) Генерация нелинейного поверхностного плазмон-поляритона ТЕ-типа на границе раздела металл – диэлектрик.

3) Создание асимметричного планарного волновода для ТЕ-мод на границе раздела диэлектрик – металл с показателем преломления  $n = n_0 + \Delta n$  и возбуждение мод ТЕ-типа. Здесь  $\Delta n$  пропорциональна интенсивности лазерного излучения.

4) Создание плазменного канала (неравновесных электронов) в прозрачном диэлектрике в слое, при-

легающем непосредственно к металлу, что отвечает генерации цилиндрического плазмон-поляритона.

Согласно нашим оценкам наиболее высокий порог разрушения по плотности энергии в лазерном импульсе будет для четвертого случая, поэтому он наименее вероятен. Во втором случае ожидается более низкий порог, но эффективность возбуждения такой ЭМ волны может оказаться достаточно низкой. В первом случае порог может быть сравним с генерацией нелинейного поверхностного плазмон-поляритона ТМ-типа, что реализуется при  $p$ -поляризации лазерного пучка. Для третьего случая порог самый низкий из рассматриваемых четырех, поэтому данный механизм – наиболее вероятен. Детально эти вопросы будут изложены в отдельной работе. Важно подчеркнуть, что основные результаты по созданию протяженных микроструктур получены при  $s$ -поляризованном лазерном излучении.

Формирование периодических микроструктур может оказаться интересным для создания дифракционных решеток, например, на тонкой лавсановой пленке, на которую предварительно нанесен слой металла. Отметим, что в настоящее время дифракционные решетки, например, для мягкого рентгеновского диапазона с пространственным периодом до  $\sim 0.3$  мкм изготавливаются с помощью интенсивно-

го электронного пучка, сканируемого по поверхности металлической пленки.

Авторы считают своим долгом поблагодарить А.П. Черкуна за помощь. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 08-02-00655 и # 07-02-00748).

- 
1. L. Cerami, Er. Mazur, St. Nolte, and Chr. B. Schaffer, *Femtosecond laser micromachining*, in *Ultrafast Optics*, Eds. R. Trebino and J. Squier, Trafford Publishing, Victoria, Canada, 2007, p. 1-74.
  2. R. Bhardwaj, E. Simova, P. P. Rajeev et al., *Phys. Rev. Lett.* **96**, 057404 (2006).
  3. С. В. Заботнов, Л. А. Головань, И. А. Остапенко и др., *Письма ЖЭТФ* **83**, 76 (2006).
  4. V. S. Letokhov, *Laser Control of Atoms and Molecules*, Oxford University Press, 2007.
  5. S. E. Irvine and A. Y. Elezzabi, *Phys. Rev. A* **73**, 013815 (2006).
  6. J. Zawadzka, D. A. Jaroszynski, J. J. Carey, and K. Wynne, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2130 (2001).
  7. Б. Н. Миронов, С. А. Асеев, В. Г. Миногин, С. В. Чекалин, *ЖЭТФ* **133**, 1155 (2008).
  8. Ф. Ф. Сысоев, М. С. Чупахин, *Введение в масс-спектрометрию*, М.: Атомиздат, 1977.