Нелинейная эволюция рельефа поверхности алюминия под действием множественных фемтосекундных лазерных импульсов

А. А. Ионин⁺, С. И. Кудряшов^{+*}, С. В. Макаров^{+×1)}, А. А. Руденко⁺, С. В. Селезнев⁺, Д. В. Синицын⁺, Т. П. Каминская°, В. В. Попов°

+ Физический институт им. Лебедева РАН, 11991 Москва, Россия

*Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", 115409 Москва, Россия

 $^{ imes}$ Университет информационных технологий, механики и оптики, 197101 С.-Петербург, Россия

 $^\circ M \Gamma \mathcal{Y}$ им. Ломоносова, 11991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 14 января 2015 г.

После переработки 26 января 2015 г.

Изучены особенности интерференционного распределения электромагнитного поля на поверхности алюминия в режиме формирования периодических поверхностных структур (ППС) под действием фемтосекундных лазерных импульсов. Показано, что ключевую роль в нелинейной эволюции рельефа с ростом числа импульсов играет нелинейная зависимость оптической обратной связи от геометрических параметров ППС. Наиболее сильная обратная связь наблюдается для периодов ППС в диапазоне $\Lambda = 0.65\lambda - 0.75\lambda$ при модуляции рельефа $h = 0.15\lambda - 0.2\lambda$, где λ – длина волны лазера. Полученные результаты объясняют часто наблюдаемое формирование ППС с близкими значениями периодов $\Lambda \sim \lambda/(1.5 \pm 0.2)$ для различных материалов, у которых мнимая часть диэлектрической проницаемости много больше единицы и сопоставима с модулем отрицательной действительной части.

DOI: 10.7868/S0370274X15050136

1. Введение. Формирование периодических поверхностных структур (ППС) под действием ультракоротких (фемтосекундных) лазерных импульсов (УКИ) является одним из самых интересных и перспективных физических явлений в области лазерной обработки поверхностей всевозможных материалов. Лазерное формирование ППС успешно используется для цветовой маркировки [1], просветления [2, 3] и локальной химической модификации [3, 4] поверхностей, возбуждения гигантского комбинационного рассеяния [5] и т.д. Однако всесторонняя теоретическая модель, позволяющая предсказывать эволюцию рельефа ППС для различных материалов при заданных условиях воздействия УКИ, до сих пор не представлена.

В последнее время для описания формирования ППС под действием УКИ предлагаются различные оригинальные модели, основанные на анализе различных поверхностных неустойчивостей [6, 7]. Однако стоит признать, что развитая в 1980-е годы для более длинных лазерных импульсов (длительность $>10^{-11}$ с) так называемая интерференционная модель [8–10], подразумевающая возбуждение поверхностных электромагнитных волн (ПЭВ), которые интерферируют с падающим излучением, наиболее адекватно описывает зависимость параметров ППС от поляризации, угла падения [11] и длины волны [12,13] лазерного излучения, а также от плотности энергии [12,14]. Вместе с тем особенность формирования ППС с помощью УКИ проявляется в том, что в течение поглощения одного УКИ рельеф поверхности практически не меняется. Это позволяет рассматривать только задачу о неоднородном распределении лазерной энергии на структурированной поверхности, оптические свойства которой мгновенно меняются в ходе фотовозбуждения и нагрева электронной подсистемы.

Предложенные ранее подходы для аналитического решения данной задачи применимы либо только к идеально ровной поверхности [10], либо к шероховатым поверхностям с очень малой амплитудой модуляции рельефа h [8, 9, 14], т.е. для $h/\lambda \ll 1$, где λ – длина волны лазера, что дает хорошее количественное согласие с интерференционной моделью только для малого числа импульсов N < 10, когда значения периодов находятся в диапазоне $\Lambda = \lambda/(1-1.1)$ [11, 14]. Напротив, для больших экспозиций ($N \gg$ $\gg 10$), создающих ППС с амплитудой модуляции h

¹⁾e-mail: makarov_sergey_vl@mail.ru

до нескольких сотен нанометров $(h/\lambda \leq 1)$, экспериментально наблюдались значения периодов ППС в диапазоне $\Lambda = \lambda/(1.3-1.7)$ [2,3,5,15,16]. Важно заметить, что такие существенно субволновые значения периодов достигались даже при условиях, когда длина волны ПЭВ для ровной поверхности практически равнялась длине волны возбуждающего ее излучения [5, 15, 16].

В последнее время интенсивно развивались численные подходы к решению задачи о распределении поглощенной лазерной энергии УКИ на поверхности с достаточно сильной модуляцией рельефа. Например, решение такой задачи в трехмерном случае позволило получить пространственные фурье-спектры распределения поглощенной энергии на неровной поверхности, что дало представление о характерных периодах и ориентациях возникающих ППС при различном уровне фотовозбуждения материала [17]. Однако подобный подход не дает информации о том, где именно находятся максимумы интерференции падающего и дифрагировавшего поля, т.е. происходит нагрев вершин или долин рельефа, что крайне важно для понимания эволюции ППС. В других работах [18, 19] проводилось двухмерное численное моделирование интерференционного распределения вложенной энергии на ППС с целью только качественной демонстрации эффектов уменьшения периода ППС с ростом их амплитуды без количественного сопоставления с экспериментальной зависимостью периода от амплитуды ППС.

В данной работе проведено численное моделирование эволюции распределения поглощенной лазерной энергии на ППС, которое находится в хорошем количественном согласии с полученными экспериментальными данными. В качестве исследуемого материала был выбран алюминий. Его оптические свойства относительно слабо меняются во время поглощения УКИ, что упрощает моделирование эволюции ППС и позволяет выделить чисто дифракционные эффекты. Показано, что полученные для алюминия закономерности могут быть обобщены на обширный круг материалов, у которых мнимая часть диэлектрической проницаемости много больше нуля и сопоставима с модулем отрицательной действительной части.

2. Экспериментальная часть. Для структурирования поверхности использовались линейно поляризованные фемтосекундные ($\tau \approx 100 \, \text{фc}$) лазерные импульсы, генерируемые титан-сапфировой лазерной системой с регенеративным и многопроходовым усилителями (Авеста Проект) с частотой следования импульсов 10 Гц и длиной волны $\lambda \approx 744 \, \text{нм.}$ Максимальная энергия в импульсе составляла 5 мДж в ТЕМ₀₀-моде. Энергия в импульсах менялась и контролировалась при помощи ослабителей и пироэлектрического измерителя энергии OPHIR, соответственно. Фокусировка лазерного излучения на поверхность осуществлялась при помощи линзы с фокусным расстоянием 80 мм. Образец располагался на расстоянии 10 мм от фокальной плоскости линзы, что обеспечивало фокусировку лазерного пучка в пятно с радиусом по уровню $1/e \ R \approx 0.25$ мм. Образец алюминия представлял собой фольгу толщиной 0.1 мм с механически полированной поверхностью (уровень шероховатости Ra ≈ 0.05 мкм). Во время лазерного облучения в воздухе образец располагался на трехмерной моторизованной трансляционной платформе Standa, способной перемещаться по трем осям. Облучение неподвижной поверхности проводилось при различном числе импульсов в диапазоне $N = 1 - 1 \cdot 10^3$. Полученные ЛИ ППС исследовались при помощи сканирующего электронного микроскопа (СЭМ, JEOL 7001F), а также атомносилового микроскопа (ACM, MT-MDT SMENA A) с кремниевым кантилевером с радиусом кривизны наконечника 10 нм.

3. Экспериментальные результаты. На рис. 1 показаны наблюдаемые в эксперименте основные стадии эволюции рельефа ППС на поверхности алюминия с ростом числа импульсов. При N = 1 появление первичных ППС с периодом $\Lambda \approx \lambda$ на поверхности наблюдалось около начальных нанотрещин (рис. 1a). При $F > 0.5 \, \text{Дж/см}^2$ и N > 1 происходят деградация первичных ППС и формирование разупорядоченной наношероховатости с амплитудой h > 100 нм. В условиях $0.2 < F < 0.4 \, \text{Дж/см}^2$ и 3 < N < 70 появляются и нарастают ППС с плавно уменьшающимся периодом в диапазоне $\lambda > \Lambda > 0.6\lambda$ (рис. 1b–d) с последующей деградацией при N > 70(рис. 1е и f). При $F < 0.2 \, \text{Дж/см}^2$ наблюдаются квазиупорядоченные нанорешетки с периодом около 0.25λ , поперечные относительно вышеуказанных ППС, что ранее связывалось с развитием кавитационной неустойчивости [20].

Существование двух путей эволюции ППС в зависимости от плотности лазерной энергии в первую очередь связано с различными режимами абляции. Если плотность энергии лежит в диапазоне $0.5-0.9 \, \text{Дж/см}^2$, примерно соответствуя порогу откольной абляции $F_{\text{spall}} \approx 0.7 \, \text{Дж/см}^2$ для ровной поверхности алюминия [21, 22], то в минимумах рельефа ППС формируется нанопена (рис. 1а), что находится в хорошем согласии с предсказаниями молекулярной динамики [23]. Глубина возникающих за



Рис. 1. СЭМ изображения поверхности алюминия после воздействия УКИ при следующих условиях: N = 1 и $F \approx 0.9 \,\mathrm{Дж/cm^2}$ (a), $F \approx 0.3 \,\mathrm{Дж/cm^2}$ (b–f) при соответствующих экспозициях N. Двойная стрелка указывает направление поляризации.

один импульс бороздок составляет примерно 50 нм, что также близко к типичным глубинам абляции откольного типа ~ 30 нм [22]. Как будет показано ниже путем численного моделирования, такая скорость абляции за один импульс оказывается слишком большой для формирования выраженной ППС с определенным периодом. Иная картина эволюции ППС с ростом числа импульсов наблюдается при 0.2 < $F < 0.4 \, \text{Дж/см}^2$, когда скорость удаления материала с поверхности на порядок меньше (до 5 нм/имп.). Она связывается с разлетом нанометрового двойного электрического слоя за счет интенсивной электронной эмиссии с поверхности [22]. Ниже будет показано, что именно такое плавное углубление является предпочтительным для формирования высококачественных глубоких ППС.

4. Моделирование эволюции ППС. Следующие пункты будут посвящены детальному моделированию распределения электромагнитного поля на ППС с различными геометрическими параметрами, соответствующими экспериментально измеренным значениям. Численный расчет распределения

электромагнитного (ЭМ) поля на структурированной поверхности проводился путем решения волнового уравнения $\mathbf{\nabla} \times (\mathbf{\nabla} \times \mathbf{E}) - (\mathbf{k}_0)^2 \varepsilon \mathbf{E} = 0$, где ${f k}_0$ – волновой вектор падающего излучения в вакууме, ∇ – векторный оператор частной производной по пространственным координатам, ε – диэлектрическая проницаемость алюминия. Рассматривалось падение плоской монохроматической электромагнитной волны на структурированную поверхность с симметричным пилообразным профилем с периодом Λ и полной амплитудой h со скругленными вершинами и впадинами с радиусом кривизны $\Lambda/5$. Решение уравнения проводилось в двумерном случае методом конечных элементов. Омические потери ЭМ-волны на нагрев поверхности пределялись как $Q = \sigma |E|^2$, где σ – проводимость, а E – локальное значение амплитуды суммарного электрического поля в материале.

4.1. Мгновенные оптические постоянные фотовозбужденного алюминия. Для УКИ моделирование распределения вложенной лазерной энергии возможно без учета модуляции рельефа в течение импульса [23]. Вместе с тем необходимо учитывать процесс фотовозбуждения поверхности алюминия, так как быстрый нагрев электронов проводимости до температур T_e порядка нескольких электрон-вольт существенно влияет на оптические свойства металла. Из модели Друде с учетом вклада решетки ε_{ib} имеем следующее выражение для диэлектрической проницаемости:

$$\varepsilon = \varepsilon_{ib} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + (1/\tau_{ee})^2} \left(1 - \frac{i}{\omega\tau_{ee}}\right), \qquad (1)$$

где частота лазерного излучения $\omega = 2.53 \cdot 10^{15} \text{ рад/с}$, плазменная частота $\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m^*}} \approx 1.8 \cdot 10^{16} \text{ рад/с}$ при эффективной массе электрона $m^* \approx 1.5m$ и электронной плотности $N \approx 1.6 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-3}$ для алюминия [24]. Время столкновения электронов τ_{ee} в рамках приближения случайных фаз определяется как [25]

$$\tau_{ee}(T_e) = K_{ee}^{-1} \frac{1 + \exp(-\hbar\omega/T_e)}{(\pi T_e)^2 + (\hbar\omega)^2},$$
 (2)

где константа электрон-электронного рассеяния $K_{ee} \approx 0.022 \, \mathrm{dc}^{-1} \, \mathrm{sB}^{-2}$ была получена путем аппроксимации табличной зависимости $\varepsilon(\omega)$ [24] по формуле (1) при $T_e = 0$.

Полученные зависимости $\operatorname{Re} \varepsilon$ и $\operatorname{Im} \varepsilon$ от T_e для $\lambda = 744$ нм показывают, что сверхбыстрый лазерный нагрев электронной подсистемы существенно влияет на оптические характеристики алюминия. В предыдущих работах по сверхбыстрому лазерному нагреву поверхности алюминия показано, что диапазон

Письма в ЖЭТФ том 101 вып. 5-6 2015



Рис. 2. Рассчитанные распределения поглощенной энергии Q падающей электромагнитной волны на поверхности возле нанобороздки (a) и на решетках (d, e) (в условных единицах). (b) – Распределение E_y -компоненты электрического поля (в условных единицах) для задачи, соответствующей панели a-с. Одномерное распределение поглощенной энергии Q, нормированное на соответствующее значение вложенной энергии Q_{sm} (рассчитаны для ровной поверхности)

 $0.3 < F < 1 \, \text{Дж/см}^2$ соответствует электронной температуре около 3 эВ [22]. В наших расчетах диэлектрическая проницаемость нагретой поверхности принимает значение $\varepsilon(T_e = 3 \text{ зB}) = -59.5 + i60.2$, что несколько отличается от начального состояния $\varepsilon(T_e = 0 \text{ зB}) = -68.9 + i39.9$ [24]. В дальнейших расчетах будет использоваться значение ε при $T_e = 3 \text{ зB}$.

Важной особенностью алюминия при накачке ИК УКИ является слабая зависимость длины волны ПЭВ от электронной температуры (т.е. от плотности энергии), из-за того что при $|\text{Re }\varepsilon| \gg 1$ или $\text{Im }\varepsilon \gg 1$ волновой вектор ПЭВ $k_{\text{SPP}} = k_0 \sqrt{\varepsilon/\varepsilon + 1} \approx k_0$, где k_0 – модуль волнового вектора света в вакууме. Тем не менее выполнение условия $\text{Re }\varepsilon < -1$ обеспечивает возможность возбуждения ПЭВ при рассеянии света на неоднородности поверхности.

4.2. Расчеты распределения поля. Рассмотрим формирование ППС возле нанобороздки при плотности энергии вблизи порога откольной абляции,

Письма в ЖЭТФ том 101 вып. 5-6 2015

что соответствует экспериментальной ситуации на рис. 1а. На рис. 2а показано рассчитанное для этих условий распределение поглощенной поверхностью энергии ЭМ-волны Q(x) в условных единицах на ровной поверхности около наноразмерной бороздки со следующими параметрами: ширина 200 нм, высота 300 нм, радиус скругления углов 50 нм. Из рис. 2b видно, что у-компонента электрического поля E_{y} возле поверхности имеет вид затухающей ПЭВ, распространяющейся от области возбуждения - нанобороздки, край которой выбирается в качестве начала координат (x = 0). Полученное в результате численного моделирования распределение поглощенной ЭМ-энергии (рис. 2с) удовлетворительно аппроксимируется выражением, описывающим интерференцию падающей ЭМ-волны и ПЭВ, возбужденной от нанобороздки: $\left[\frac{Q(x)}{Q_{sm}}\right] = 1 + Ae^{-x/L_{\text{SPP}}} \cos[\text{Re}(k_{\text{SPP}})x +$ $+\varphi$, где коэффициент A = 0.22 определяет отношение интенсивностей ПЭВ и падающей ЭМ-волны,

 $L_{\rm SPP} = 14.0$ мкм – длина распространения ПЭВ, действительная часть волнового вектора ПЭВ $\operatorname{Re} k_{\operatorname{SPP}} =$ = 8.45 мкм $^{-1}, \ \mbox{фазовая}$ добавка φ = -0.8. Знаменатель в экспоненте в аппроксимационной формуле характеризует длину пробега ПЭВ, которую можно также оценить аналитически: $L_{\rm SPP} = (2 {\rm Im} \, k_{\rm SPP})^{-1}$. где $\operatorname{Im} k_{\operatorname{SPP}}$ – мнимая часть волнового вектора ПЭВ $k_{\rm SPP} = k_0 \sqrt{\varepsilon/\varepsilon} + 1$. Аналитическая оценка затухания ПЭВ при $\varepsilon(T_e = 3 \, \text{sB}) = -59.5 + i60.2$ дает значение длины пробега $L_{\rm SPP} \approx 14$ мкм, аналогичное найденному численно, что подтверждает интерференционную природу полученной картины и экспериментально наблюдаемого периодического повреждения возле нанобороздок (рис. 1а). Результаты сопоставления аналитической и численной оценок для пробега ПЭВ хорошо согласуются с типичными масштабами "распространения" ППС вблизи нанобороздок (до 20 мкм).

Как видно из полученного распределения интенсивности на поверхности, коэффициент усиления интенсивности ЭМ-поля в максимумах интерференции около бороздки по сравнению со случаем отсутствия интерференции может достигать 1.2. Это означает, что ее облучение УКИ с плотностью энергии менее 0.5 Дж/см² не приводит к превышению порога откольной абляции ($F_{\rm spall} \approx 0.7$ Дж/см² [21]). Вместе с тем облучение данной бороздки УКИ с плотностью энергии 0.9 Дж/см² (рис. 1а) с учетом усиления должно приводить к увеличению локальной плотности энергии в максимумах интерференции до 1.1 Дж/см², что существенно выше порога откольной абляции.

Численный расчет для распределения вложенной энергии ЭМ-поля (рис. 2d и e) показывает, что на поверхности с ППС при $\varepsilon(T_e = 3 \, \text{эB}) = -59.5 + i60.2$ происходит неоднородный нагрев: значения поглощенной энергии в долинах (Q_v), как правило, превыпают соответствующие значения на вершинах (Q_t) ППС, т.е. при данных условиях имеется положительная обратная связь для ее развития, где параметр, характеризующий обратную оптическую связь, $\zeta = \log_{10}(Q_v/Q_t) > 0$.

Более детальный количественный анализ вычисленной зависимости ζ от амплитуды модуляции решетки h и ее периода Λ для $\varepsilon(T_e = 3 \text{ >B}) = -59.5 + i60.2$ при $\lambda = 744$ нм представлен на рис. За. Видно, что в диапазоне h = (0-250) нм для $\Lambda \leq \lambda$ имеем $\zeta > 0$. Из данного рисунка также видно, что при условии $\Lambda \leq \lambda$ каждая зависимость $\zeta(h)$ имеет выраженный максимум, который смещается в сторону больших значений h с уменьшением периода решетки Λ . Важно отметить, что при $\Lambda \geq \lambda$ на зависимости $\zeta(h)$ нет максимума, а $\zeta \leq 0$. Это говорит о том, что с ростом числа лазерных импульсов N и сопутствующим ростом h возможно развитие только субволновых решеток, т.е. $\Lambda \leq \lambda$.

Такое поведение параметра ζ определяется главным образом коэффициентом усиления поглощения на вершинах $\eta_t = Q_t/Q_{sm}$, где Q_{sm} – поглощенная энергия, рассчитанная для ровной поверхности. Действительно, коэффициент усиления поглощения в долинах $\eta_v = Q_v/Q_{sm}$ меняется в пределах одного порядка, в то время как значения η_t варьируются в пределах двух порядков и имеют выраженные минимумы (рис. 2b). Например, коэффициент усиления на вершинах η_t решетки с периодами $\Lambda = \lambda$ меньше единицы только при относительно малых значениях h (примерно от 10 до 50 нм, см. рис. 3b). Это является причиной невозможности дальнейшего развития решеток, появляющихся после одноимпульсного воздействия (рис. 1а). Напротив, с увеличением h (с ростом N) η_t становится меньше для меньших периодов решеток, достигая минимального значения для периодов в окрестности $\Lambda \approx 550$ нм. На рис. Зс показана расчетная зависимость максимального значения параметра $\zeta(\max{\zeta})$ от периода решетки Λ , которая демонстрирует максимум в диапазоне $\Lambda = (500-550)$ нм. Каждый максимум зависимостей $\zeta(h)$ соответствует определенному Λ , который и должен реализовываться в виде наиболее интенсивно нарастающей компоненты рельефа. На рис. 3d штриховой линией в виде зависимости $\Lambda(h)$ приведена рассчитанная серия значений Λ и h, при которых наблюдаются $\max{\zeta}$. Вместе с тем численное моделирование не дает полного понимания физической причины сдвига положения максимума функции $\zeta(h)$ с уменьшением периода (рис. 3а).

Изменение положения максимума функции $\zeta(h)$ с ростом периода Λ может быть связано с так называемым синим сдвигом длины волны ПЭВ, распространяющихся по неровной поверхности, хорошо исследованным ранее [26]. Для аналитической оценки эффекта синего сдвига часто используется модель [27], в которой рассматривается рассеяние ПЭВ на неоднородностях поверхности, приводящее к замедлению распространения ПЭВ и увеличению модуля волнового вектора в виде $k(h) = k_{\text{SPP}} + \Delta k(h)$, где

$$\Delta k(h) = h^2 \frac{\omega_0^3}{c^3} \int d^2 \mathbf{k} g(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0) A(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) + ih^2 \frac{\omega_0^5}{c^5} \int_0^{2\pi} d\varphi g(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0) B(\varphi, \mathbf{k}_0), \qquad (3)$$
$$A(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) = \frac{c^7}{\omega_0^7} \frac{k_0^6}{\sqrt{-\varepsilon_1 \varepsilon_2}} \frac{1}{k_0^2 - k^2} \times$$

Письма в ЖЭТФ том 101 вып. 5-6 2015



Рис. 3. (а) Численно рассчитанная зависимость коэффициента обратной связи $\zeta = \log_{10}(Q_v/Q_t)$ от амплитуды ППС h для различных периодов Λ (приведены в нм) при $\lambda = 744$ нм. (b) – Численно рассчитанные коэффициенты усиления поглощенной энергии в долинах $\eta_v = Q_v/Q_{sm}$ (сплошные линии) и вершинах $\eta_t = Q_t/Q_{sm}$ (штриховые линии) решеток. (c) – Максимальные значения численно рассчитанных коэффициентов ζ для различных периодов решеток Λ , нормированных на $\lambda = 744$ нм. (d) – Рассчитанная по формулам (3)–(5) зависимость положения пика резонанса для возбуждения ПЭВ (сплошная линия), численно полученная зависимость положения максимума функции $\zeta(h)$ от периода Λ (штриховая линия), экспериментальная зависимость периода Λ от амплитуды модуляции h ППС (значки)

$$\times \left[\frac{-ik_1k^2}{\varepsilon_1} \cos^2 \varphi + \frac{2k^3 \cos \varphi}{\sqrt{-\varepsilon_1 \varepsilon_2}} + \frac{-ik_1k^2}{\varepsilon_2} - \frac{\omega_0^4}{c^4} \frac{k_0^2 - k^2}{k_0^3} \sqrt{-\varepsilon_1 \varepsilon_2} + i\frac{k_2}{\varepsilon_2} \left(k\cos \varphi - \frac{-ik_1\sqrt{\varepsilon_2}}{\sqrt{-\varepsilon_1}} \right)^2 \right],$$
(4)
$$B(\varphi, \mathbf{k}_0) = \frac{c^7}{\omega_0^7} \frac{\pi}{-\varepsilon_1 \varepsilon_2} (1 - \cos \varepsilon)^2.$$
(5)

Здесь ω_0 и k_0 – радиальная частота и волновой вектор падающего на поверхность света соответственно, связанные как $\omega_0 = ck_0$; c – скорость света в вакууме; ε_1 и ε_2 – диэлектрические проницаемости материала поверхности и окружающей среды соответственно; q – волновой вектор решетки, по модулю равный $q = 2\pi/\Lambda$. Также введены следующие обозначения:

 $\begin{aligned} -ik_1 &= \sqrt{k^2 - \frac{\varepsilon_1 \omega_0^2}{c^2}}, \, k_2 = \frac{\varepsilon_2 \omega_0^2}{c^2} - k^2, \, \cos\varphi = \frac{\mathbf{k} \cdot \mathbf{k}_0}{|k| \cdot |k_0|} \, \mathbf{g}(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0) &= 0.25 [\delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0 - \mathbf{q}) + \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0 + \mathbf{q})]. \end{aligned}$

Расчеты по формулам (3)–(5) проводились для $\lambda = 2\pi/k_0 = 744$ нм, $\varepsilon_1 = \varepsilon(T_e = 3 \text{ sB}) = -59.5 + i60.2$ и $\varepsilon_2 = 1$ в диапазоне h = (0-250) нм. На рис. 3d дано сравнение полученной расчетной зависимости $2\pi/\text{Re}[k(h)]$ с аналогичной зависимостью для положения максимума параметра ζ . Хотя формулы (3)–(5) не дают информацию о значении ζ , проведенное сравнение указывает на то, что именно возбуждение ПЭВ ответственно за выраженный пик в зависимостях $\zeta(h)$ (рис. 3a).

Полученные результаты численного и аналитического исследования взаимодействия УКИ с ППС на поверхности алюминия объясняют динамику изменения периода ППС с ростом числа импульсов, на-

Письма в ЖЭТФ том 101 вып.5-6 2015



Рис. 4. Результаты численного моделирования с целью определения максимального коэффициента $\zeta = \log_{10}(Q_v/Q_t)$ для ППС с различными периодами при различных значениях комплексной диэлектрической проницаемости материала ε

блюдаемую в эксперименте (точки на рис. 3d). Существенное отклонение от теоретических предсказаний наблюдается при h > 100 нм, когда происходит резкое углубление ППС со слабым изменением периода. Действительно, наибольшей скорости углубления ППС, т.е. наибольшим значениям ζ , при $\lambda = 744$ нм соответствуют условия $\Lambda = (500-550)$ нм и h = (120-150) нм (рис. 3а-с). Коэффициент усиления ЭМ-поля в минимумах рельефа в данном случае оказывается на уровне $\eta_v \approx 5$, запуская более быстрые механизмы абляции (откольный или фрагментационный). Это приводит к резкому скачку амплитуды h без возможности плавной перестройки периода Λ . В результате усиление на вершинах рельефа ППС может оказаться достаточным для начала их деградации.

На рис. 4 приведены результаты численного моделирования значений $\max{\zeta}$ при различных значениях $\operatorname{Re} \varepsilon = -(10-30)$ (рис. 4a) и $\operatorname{Im} \varepsilon = (10-30)$ (рис. 4b). Они показывают, что в широком диапазоне ε наибольшее ζ соответствует периодам ППС в области $\Lambda = 0.65\lambda - 0.75\lambda$, т.е. $\Lambda = (450 - 550)$ нм для $\lambda = 744$ нм. Амплитуды рельефа h, при которых коэффициенты ζ достигали максимальных значений, не превышали $h \approx 0.25\lambda$, т.е. $h \approx 200$ нм. Действительно, многочисленные эксперименты по многоимпульсному (N > 10) формированию ППС на Ni [2], Pt [15], Au [15], Ag [16], а также на алюминии показывают, что обнаруженные значения периода лежат около $\Lambda \sim \lambda/(1.5 \pm 0.2)$, что хорошо согласуется с представленными результатами моделирования. Также видно, что на величину $\max{\{\zeta\}}$ существенное влияние оказывает параметр $\operatorname{Re} \varepsilon / \operatorname{Im} \varepsilon$, с ростом которого происходит нелинейный рост $\max{\{\zeta\}}$. Действительно, соотношение $\text{Re } \varepsilon/\text{Im } \varepsilon$ оказывает существенное влияние на усиление ЭМ-поля возле поверхности при возбуждении ПЭВ [9, 26].

Выбранный диапазон величин диэлектрической проницаемости соответствует при $\lambda = 740$ нм значениям для таких невозбужденных переходных металлов, как Ni (Re $\varepsilon = -12.5$, Im $\varepsilon = 20.1$), Pd (Re $\varepsilon =$ $-18.0, \, \mathrm{Im}\,\varepsilon = 19.1), \, \mathrm{Pt} \, (\mathrm{Re}\,\varepsilon = -15.0, \, \mathrm{Im}\,\varepsilon = 25.1)$ и т.д. [24]. Однако сверхбыстрое фотовозбуждение свободных носителей и их нагрев могут как существенно расширить (за счет уменьшения τ_{ee}), так и сузить (за счет насыщения межзонных переходов) данный спектр материалов, для которых длина волны ПЭВ практически не отличается от длины соответствующей ЭМ-волны в вакууме. В связи с этим стоит указать также такие важные материалы, как Au (Re $\varepsilon = -19.4$, Im $\varepsilon = 1.4$), Ag (Re $\varepsilon = -24.0$, $\operatorname{Im} \varepsilon = 1.5$), Cu ($\operatorname{Re} \varepsilon = -20.0$, $\operatorname{Im} \varepsilon = 2.0$) [24], y которых возможно существенное увеличение $\mathrm{Im}\,\varepsilon$ за счет увеличения частоты соударений $(1/\tau_{ee})$ с ростом температуры (см. формулу (2)). В рассматриваемый круг материалов при определенных условиях попадают различные полупроводники и диэлектрики, облученные достаточно интенсивными УКИ, генерирующими плотности носителей зарядов существенно больше критической [14, 18, 28]. Дополнительным фактором, увеличивающим $\operatorname{Im} \varepsilon$ у ряда материалов, может быть и нарушение структуры кристаллической решетки (или аморфизации) приповерхностного слоя материала во время многоимпульсного воздействия УКИ [29].

6. Заключение. В результате проведенных исследований можно сделать следующие обобщающие выводы. 1. Неоднородное распределение энергии лазерного поля на структурированной поверхности является ключевым фактором в многоимпульсной эволюции ППС под действием УКИ. По мере увеличения модуляции рельефа происходит уменьшение характерного периода ППС, при котором параметр ζ , характеризующий оптическую обратную связь, максимален. Это связано с уменьшением длины волны ПЭВ, возбуждаемых и распространяющихся на поверхности с ППС.

2. Наибольшее значение параметра ζ при периодах ППС, принимающих значения $\Lambda = 0.65\lambda - 0.75\lambda$, и при модуляции рельефа $h = 0.15\lambda - 0.2\lambda$. Данный эффект является универсальным для всех материалов, которые обеспечивают распространение ПЭВ с длиной волны, близкой к длине волны падающего света.

3. Для формирования глубоких субволновых ППС под действием серии УКИ необходимо облучать поверхность в режиме существенно ниже порога откольной абляции. В случае алюминия это диапазон $0.2 < F < 0.4 \, \text{Дж}/\text{см}^2$, когда толщина удаляемого за один импульс слоя составляет единицы нанометров. Необходимость медленного изменения амплитуды модуляции рельефа h связана с сильно нелинейной зависимостью от нее параметра ζ .

Работа была выполнена при частичной поддержке программ президиума РАН, а также при государственной финансовой поддержке ведущих университетов Российской Федерации (субсидия 074-U01) в рамках программы ITMO Post-Doctoral Fellowship.

- B. Dusser, Z. Sagan, H. Soder, N. Faure, J. P. Colombier, M. Jourlin, and E. Audouard, Opt. Express 18, 2913 (2010).
- В. П. Корольков, А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, Л. В. Селезнев, Д. В. Синицын, Р. В. Самсонов, А. И. Маслий, А. Ж. Медведев, Б. Г. Гольденберг, Квант. электр. 41, 387 (2011).
- A. A. Ionin, Y. M. Klimachev, A. Y. Kozlov, S. I. Kudryashov, A. E. Ligachev, S. V. Makarov, L. V. Seleznev, D. V. Sinitsyn, A. A. Rudenko, and R. A. Khmelnitsky, Appl. Phys. B 111, 419 (2013).
- A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, A. A. Rudenko, L. V. Seleznev, and D. V. Sinitsyn, Las. Phys. Lett. (in print, 2015).
- А.А. Ионин, С.И. Кудряшов, А.Е. Лигачев, С.В. Макаров, Н.Н. Мельник, А.А. Руденко, Л.В. Селезнев, Д.В. Синицын, Р.А. Хмельницкий, Квант. электр. 43, 304 (2013).
- 6. E. L. Gurevich, Phys. Rev. E 83, 031604 (2011).
- J. Reif, O. Varlamova, S. Uhlig, S. Varlamov, and M. Bestehorn, Appl. Phys. A 117, 179 (2014).

- J. E. Sipe, J. F. Young, J. S. Preston, and H. M. Van Driel, Phys. Rev. B 27, 1141 (1983).
- С. А. Ахманов, В. И. Емельянов, Н. И. Коротеев, В. Н. Семиногов, УФН 147, 675 (1985).
- В. С. Макин, Ю. И. Пестов, Р. С. Макин, А. Я. Воробьев, Оптич. журнал 76, 9 (2009).
- A.A. Ionin, S.I. Kudryashov, S.V. Makarov, L.V. Seleznev, D.V. Sinitsyn, E.V. Golosov, O.A. Golosova, Yu.R. Kolobov, and A.E. Ligachev, Appl. Phys. A **107**, 301 (2012).
- Е. В. Голосов, А. А. Ионин, Ю. Р. Колобов, С. И. Кудряшов, А. Е. Лигачев, Ю. Н. Новоселов, Л. В. Селезнев, Д. В. Синицын, ЖЭТФ **140**, 21 (2011).
- M. Huang, F. Zhao, Y. Cheng, N. Xu, and Z. Xu, Opt. Express 16(23), 19354 (2008).
- J. Bonse, A. Rosenfeld, and J. Krüger, J. Appl. Phys. 106, 104910 (2009).
- A. Y. Vorobyev, V. S. Makin, and C. Guo, J. Appl. Phys. 101, 034903 (2007).
- H. W. Chang, Y. C. Tsai, C. W. Cheng, C. Y. Lin, Y. W. Lin, and T. M. Wu, J. Colloid Interface Sci. 360, 305 (2011).
- J. Z. P. Skolski, G. R. B. E. Römer, and J. V. Obona, J. Appl. Phys. **115**, 103102 (2014).
- M. Huang, F. Zhao, Y. Cheng, N. Xu, and Z. Xu, ACS Nano 3, 4062 (2009).
- J. W. Yao, C. Y. Zhang, H. Y. Liu, Q. F. Dai, L. J. Wu, S. Lan, V. A. Trofimov, and T. M. Lysak, Opt. Express 20, 905 (2012).
- А.А. Ионин, С.И. Кудряшов, А.Е. Лигачев, С.В. Макаров, Л.В. Селезнев, Д.В. Синицын, Письма в ЖЭТФ 94, 289 (2011).
- А. А. Ионин, С.И. Кудряшов, А.Е. Лигачев, С.В. Макаров, Л.В. Селезнев, Д.В. Синицын, Письма в ЖЭТФ 94, 35 (2011).
- A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, L. V. Seleznev, and D. V. Sinitsyn, Appl. Phys. A 117, 1757 (2014).
- В. В. Жаховский, Н.А. Иногамов, К. Нишихара, Письма в ЖЭТФ 87, 491 (2008).
- E. D. Palik, Handbook of Optical Constants of Solids, Academic Press, N.Y. (1998).
- R. H. M. Groeneveld, R. Sprik, and A. Lagendijk, Phys. Rev. B 51, 11433 (1995).
- H. Raether, Surface Plasmons on Smooth Surfaces, Springer, Berlin (1988).
- E. Kröger and E. Kretschmann, Phys. Stat. Sol. 76, 515 (1976).
- А. А. Ионин, С.И. Кудряшов, С.В. Макаров, П.Н. Салтуганов, Л.В. Селезнев, Д.В. Синицын, А.Р. Шарипов, Письма в ЖЭТФ 96, 413 (2012).
- J. Jia, M. Li, and C. V. Thompson, Appl. Phys. Lett. 84, 3205 (2004); E. D. Palik, Handbook of optical constants of solids, Academic Press, N.Y. (1998).

Письма в ЖЭТФ том 101 вып. 5-6 2015