Письма в ЖЭТФ, том 121, вып. 9, с. 711 – 716

Неустойчивость Плато–Рэлея как затравочный процесс самоорганизации фотонного кристалла на поверхности кристаллического кремния в фемтосекундном лазерном поле

С. И. Кудряшов[+1)], *Н. А. Смирнов*[+], *Н. И. Буслеев*[+], *П. П. Пахольчук*[+], *М. С. Ковалев*[+], *М. А. Тархов*[*], *Г. Х. Султанова*[×], *И. В. Красногоров*[×]

[+] *Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия*

[*] *Институт нанотехнологий микроэлектроники РАН, 115487 Москва, Россия*

[×] *Национальный исследовательский центр "Курчатовский институт" – Технологический институт сверхтвердых и новых углеродных материалов, 108840 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 20 марта 2025 г.
После переработки 1 апреля 2025 г.
Принята к публикации 2 апреля 2025 г.

Многоимпульсная экспозиция поверхности (111) кристаллического кремния в режиме сканирования сильнофокусированным фемтосекундным лазерным излучением инфракрасного диапазона (длина волны – 1.95 мкм) формирует вдоль или поперек облученной области – в зависимости от взаимной ориентации скорости движения и поляризации излучения – аномальные (параллельные поляризации излучения) нанорешетки из штрихов рельефа с периодом около 0.4 мкм. При более высоких плотностях энергии или экспозициях штрихи трансформируются по механизму Плато–Рэлея в периодические линейные последовательности отвердевших нанокапель (нанопичков) с периодом около 0.7 мкм. При дальнейшем небольшом увеличении плотности энергии излучения или экспозиции ближнепольное рассеяние ИК-лазерного излучения на линиях из нанопичков с участием поверхностных плазмонов формирует слегка вытянутый вдоль направления лазерной поляризации двумерный фотонный кристалл из плотноупакованных нанопичков с субволновыми размерами ячейки.

DOI: 10.31857/S0370274X25050018, EDN: QNEJVI

1. Периодические структуры (ППС) модификации поверхности самых различных материалов, формируемые поляризованным лазерным излучением, исследуются уже более полувека [1–3]. Одним из механизмов их формирования является лазерное возбуждение поверхностных плазмон-поляритонов на исходных или лазерно-индуцированных (квази)статических неоднородностях рельефа [2, 3] или динамических лазерно-индуцированных неоднородностях диэлектрической проницаемости в пределах фокального пятна [4], и последующая интерференция плазмон-поляритонов с лазерным излучением [2–5] или между собой [6]. Далее, в максимумах интерференции электромагнитного поля происходит его локальное взаимодействие с материалом и фиксация на поверхности последнего неоднородного распределения объемной плотности энергии в виде структурной модификации вещества (например, аморфизации [7]) или топографического изменения рельефа (термокапиллярное смещение расплава – эффект Марангони [8], абляционное удаление расплава [9]). Интересно, что в процессе лазерного облучения расплавленные топографические штрихи рельефа потенциально могут далее подвергаться распаду по механизму Плато–Рэлея (неустойчивость струи по отношению к ее радиусу и радиусу кривизны модуляции последнего вдоль струи, характеризуемым уравнением Юнга–Лапласа [10]), довольно типичному для расплавленных лазером искусственных наноструктур [11–13] или лазерно-индуцированных наноструй [14–16]. Более того, до сих пор в лазерных экспериментах коронообразные структуры спонтанного распада по механизму Плато–Рэлея с микрометровыми масштабами наблюдались только для бортиков абляционных кратеров в тонких металлических пленках [17, 18]. Напротив, для наноразмерных лазерно-индуцированных ППС (ЛИПСС), характеризующихся более сложным многообразием физических (лазерных, плазмонных, гидродинамических) взаимодействий с дополнительным размерным параметром периода нанорешетки,

1) e-mail: kudryashovsi@lebedev.ru

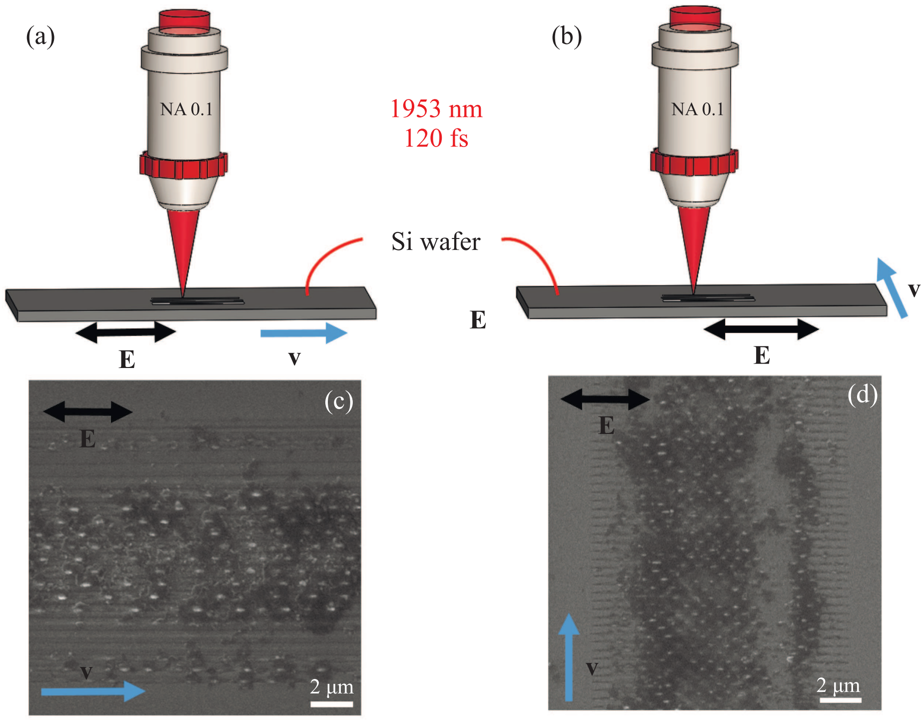

Рис. 1. (Цветной онлайн) Схемы лазерной записи ППС для схем с $\mathbf{E}\|\mathbf{v}$ (a) и $\mathbf{E} \perp \mathbf{v}$ (b); СЭМ-снимки характерной поверхностной топографии для режима надпороговой записи для $\mathbf{E}\|\mathbf{v}$ (c) и $\mathbf{E} \perp \mathbf{v}$ (d)

особенности проявления механизма Плато–Рэлея ранее не сообщались.

В настоящей работе исследовано формирование ППС с субволновыми периодами на поверхности кристаллического кремния Si(111) под действием фемтосекундных инфракрасных (ИК) лазерных (длина волны – 1.95 мкм) импульсов в зависимости от плотности энергии излучения и экспозиции, и обнаружен распад штрихов ППС при увеличении плотности энергии или экспозиции с формированием линейных массивов нанопичков, а далее – их ближнепольной самоорганизацией в лазерном поле в виде двумерного фотонного кристалла.

2. Образец представлял собой двусторонне-полированную пластину размером 25×25 мм и толщиной 0.38 мм из нелегированного кристаллического кремния ориентации (111). Лазерная модификация поверхности пластины, размещенной на трехмерной моторизованной платформе с шагом 0.1 мкм и движущейся с линейными скоростями $|\mathbf{v}| = 40{-}1000$ мкм/с, осуществлялась излучением параметрического генератора PARUS (Авеста проект) с длительностью импульсов 120 фс, длиной волны 1.95 мкм, энергией до 1 мкДж и частотой следования $f = 50{-}1000$ Гц, сфокусированным стеклянным микрообъективом с числовой апертурой NA = 0.1 в пятно с нормальнеым распределением энергии и 1/e-диаметром $2w \approx 30$ мкм (максимальная пиковая плотность энергии $F \approx 0.15$ Дж/см^2 и интенсивность $I \approx 1.2$ ТВт/см^2). Направление движения платформы $\mathbf{v}$ или совпадало с направлением лазерной поляризации E ($\mathbf{E}\|\mathbf{v}$), или было перпендикулярно ему ($\mathbf{E} \perp \mathbf{v}$) (рис. 1a, b). Облученные нанотекстурированные образцы (рис. 1c, d) исследовались с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ, TESCAN Vega) и конфокальной оптической профилометрии (Sensofar S neox 3D). При конфокальной съемке использовался объектив с увеличением 150× (NA = 0.95, латеральное разрешение – 140 нм, аксиальное – 1 нм), средняя шероховатость составила $S_a \approx 2$ нм.

3. Аномальные лазерно-индуцированные ППС с ориентацией штрихов параллельно $\mathbf{E}$ (волновой вектор решетки $\mathbf{q} \perp \mathbf{E}$) с периодом $\Lambda \approx 0.4$ мкм появляются в центре фокального пятна в зоне сканирования при превышении порогового значения поверхностной плотности энергии $F_{\mathrm{TH}} \approx 0.07$ Дж/см^2 и экспозиции $N \approx 2wf/|\mathbf{v}| = 300$ импульсов в точку (рис. 2a, 3a). В спектрах двумерного фурье-преобразования на рис. 2a, 3a им отвечают два рефлекса $(-q, +q)$. Данная ориентация штрихов считается аномальной (ортогональной) по отношению

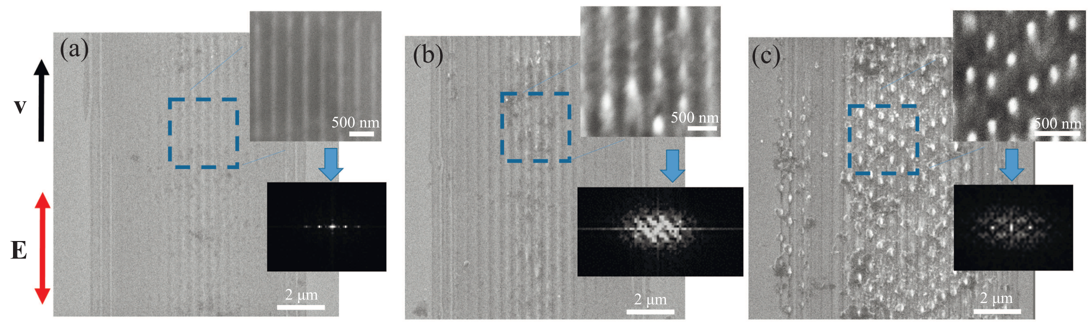

Рис. 2. (Цветной онлайн) Панорамные и увеличенные (вставки) СЭМ-снимки топографий поверхности кремния в околопороговом ((a), $F \approx 0.07$ Дж/см^2, $N \approx 500$), слабонадпороговом ((b), $F \approx 0.07$ Дж/см^2, $N \approx 600$) и надпороговом ((c), $F \approx 0.074$ Дж/см^2, $N \approx 600$) режимах для схемы с $\mathbf{E}\|\mathbf{v}$. Вставками даны двумерные фурье-спектры приведенных структур

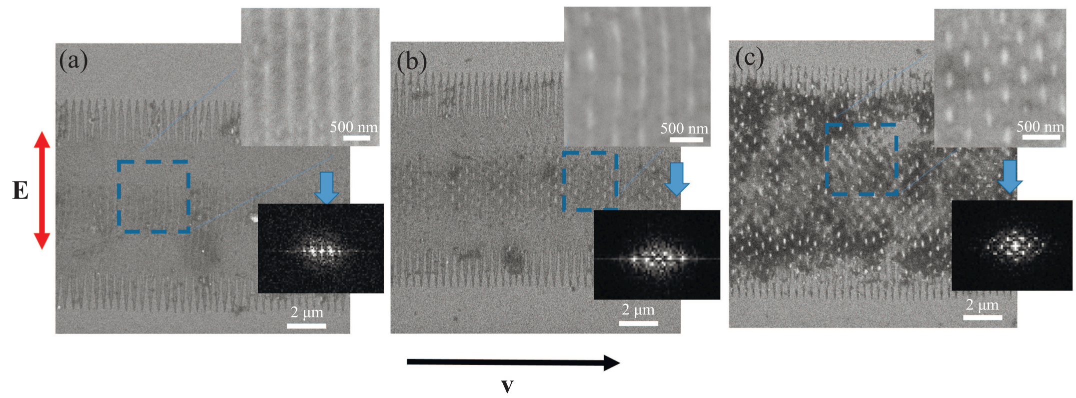

Рис. 3. (Цветной онлайн) Панорамные и увеличенные (вставки) СЭМ-снимки топографий поверхности кремния в околопороговом ((a), $F \approx 0.07$ Дж/см^2, $N \approx 450$), слабонадпороговом ((b), $F \approx 0.07$ Дж/см^2, $N \approx 540$) и надпороговом ((c), $F \approx 0.073$ Дж/см^2, $N \approx 800$) режимах для схемы с $\mathbf{E} \perp \mathbf{v}$. Вставками даны двумерные фурье-спектры приведенных структур

к диаграмме дифракции линейно поляризованного света [2–4], а период штрихов многократно уступает периоду ранее предсказанных аномальных *микроструктур* [3]. Данные ППС могут присутствовать вблизи порога (на периферии фокального пятна в области скана на рис. 2, 3) как решетки структурной модификации (аморфизованного кремния) на поверхности кристаллической пластины, чуть выше порога (в центре скана на рис. 2a, 3a) – как решетки рельефа поверхности. Механизм формирования таких ППС с субволновыми ($\sim \lambda/10$) периодами рассмотрен в ряде работ [19–21] и связывается с достижением поверхностного плазмонного резонанса для излучения с длиной волны 1.95 мкм в верхнем слое фотовозбужденного кремния [20, 21].

В слабонадпороговом режиме – для величины плотности энергии $F \geq 0.07$ Дж/см^2 и экспозиции $N > 500$ импульсов на рис. 2b, 3b в центре фокального пятна в области сканирования наблюдается распад штрихов с формированием вдоль них линейной периодической последовательности нанопичков (структуры Плато–Рэлея) с периодом $\Delta \approx 0.6$ мкм. Спектры двумерного фурье-преобразования приобретают двумерный характер с сохранением доминирующей ориентации (рис. 2b, 3b). Предполагается, что в этих условиях облучения штрихи являются расплавленными (при $F \approx 0.08$ Дж/см^2 в области сканирования иногда наблюдаются области микроплавления) и теряют устойчивость к изменению полуширины d и/или полувысоты h штриха, согласно уравнению Юнга–Лапласа [10]

$$\Delta P = -\gamma \nabla \cdot \mathbf{n} = -\gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right), \qquad (1)$$

где ΔP – разность давлений (давление Лапласа), γ – поверхностное натяжение жидкости, n – нормаль, указывающая на поверхность, $R_{1,2}$ – главные радиусы кривизны, в числе которых радиус кривизны модуляции высоты или ширины штриха, и радиус струи (высоты или ширины штриха, считая его

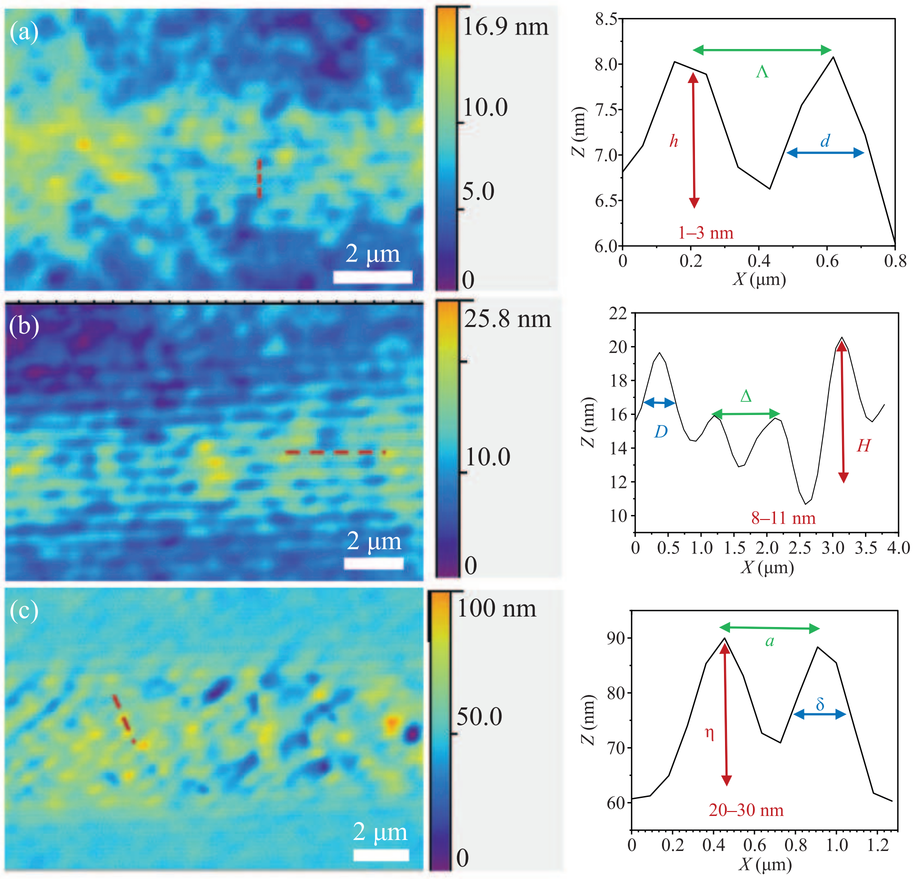

Рис. 4. (Цветной онлайн) 3D-карта топографии структур поверхности кремния в околопороговом ((a), $F \approx 0.07$ Дж/см^2, $N \approx 500$), слабонадпороговом ((b), $F \approx 0.07$ Дж/см^2, $N \approx 600$) и надпороговом ((c), $F \approx 0.074$ Дж/см^2, $N \approx 600$) режимах для схемы с $\mathbf{E}\|\mathbf{v}$

в сечении полукруглым с диаметром, лежащим на поверхности). При этом нарастает некоторый квазиконтинуум мод модуляции с волновым вектором $\mathbf{k}$, удовлетворяющий условию [22]

$$|k|\{d+h\}/2 < 1, \qquad (2)$$

причем наиболее быстро растущая мода отвечает точному соотношению $|k|\{d+h\}/2 \approx 0.697$ [22]. В условиях нашего эксперимента условие (2) принимает вид $\Delta = (2\pi/0.697)(d+h)/2 \approx 0.6$ мкм для $d \approx 0.2$ мкм и $h \le 0.01$ мкм (рис. 4a). Как упоминалось выше, аналогичные структуры Плато–Рэлея хорошо известны для распада искусственных (литографических) наноструктур [11–13], однако в динамических условиях фемтосекундного лазерного наноструктурирования реальных поверхностей наблюдаются впервые.

Наконец, при дальнейшем увеличении плотности энергии $F \approx 0.074$ Дж/см^2 и экспозиции $N \ge 600$ линейные структуры Плато–Рэлея трансформируются в слегка вытянутую вдоль направления лазерной поляризации $\mathbf{E}$ однослойную плотную шаровую упаковку нанопичков с длинной стороной $a \approx 0.5$ мкм и короткой стороной $c \approx 0.4$ мкм при расстоянии между "штрихами" около 0.3 мкм (рис. 2c, 3c). В спектрах двумерного фурье-преобразования при этом структура рефлексов становится более сложной, но также симметричной, с сохранением доминирующей ориентации перпендикулярно штрихам нанорешетки (рис. 2c, 3c). Можно предположить, как и при лазерно-индуцированном формировании промежуточных аномальных ППС, при дальнейшем облучении в этих условиях линейная структура Плато–Рэлея выступает аномально (по нормали к направлению поляризации) рассеивающей линейно-поляризованное лазерное излучение затравкой для ближнепольного суб-волнового плазмонного интерференционного наноструктурирования штрихов ППС. Исследования данного механизма фемтосекундного лазерного наноструктурирования поверхности с целью выяснения роли участвующих наномасштабных плазмонных и гидродинамических процессов продолжаются.

3D-карты топографии наноструктур на поверхности кремния для режима записи с $\mathbf{E} \perp \mathbf{v}$, дополнительно полученные с помощью оптического конфокального микроскопа в пределах разрешения ≥ 0.14 мкм, показаны на рис. 4. Заметно, что полуширина штрихов ППС так же, как для снимков СЭМ (рис. 2, 3), составляет $d \leq 0.2$ мкм (полувысота h – не более 0.01 мкм) на рис. 4a, а формирующиеся в результате процесса распада по процессу Плато–Рэлея нанопички имеют более существенную полувысоту $\eta \approx 0.01{-}0.03$ мкм и полуширину $\delta \approx 0.2$ мкм (рис. 4c).

Заметим, что данный тип фемтосекундной лазерно-индуцированной субволновой неабляционной плазмонной самоорганизации двумерного фотонного кристалла из плотноупакованных нанопичков является, по сравнению с другими известными типами абляционного и неабляционного лазерно-индуцированного наноструктурирования – в том числе, в жидкостях [23–27], сложным, трехстадийным процессом с участием лазерно-возбужденных плазмонов для генерации одномерных субволновых ППС, их распадом при плавлении по механизму Плато–Рэлея и заключительной ближнепольной самоорганизацией двумерных наноструктур в виде фотонного кристалла. Существенную роль здесь играет фемтосекундная длительность импульсов, обеспечивающая сильные плазмонные поля, а также относительно мягкие по режимам плавление, распад и самоорганизацию наноструктур.

4. В заключение, в данной работе исследовано многоимпульсное наноструктурирование поверхности Si(111) кристаллического кремния в режиме сканирования сильнофокусированным фемтосекундным лазерным излучением ИК-диапазона (длина волны – 1.95 мкм), обнаружено формирование аномальной (параллельные поляризации излучения) нанорешетки из штрихов рельефа с периодом около 0.4 мкм. При этом при более высоких плотностях энергии или экспозициях штрихи трансформируются по механизму Плато–Рэлея в периодические линейные последовательности отвердевших нанокапель (нанопичков) с периодом около 0.7 мкм, которые далее благодаря ближнепольному рассеянию ИК-лазерного излучения самоорганизуются с участием поверхностных плазмонов в слегка вытянутый вдоль направления лазерной поляризации двумерный фотонный кристалл из плотноупакованных нанопичков с субволновыми размерами ячейки.

Финансирование работы. Исследования поддержаны грантом Российского научного фонда # 24-22-00290, https://rscf.ru/project/24-22-00290.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. M. Birnbaum, J. Appl. Phys. **36**(11), 3688 (1965).
2. J. E. Sipe, J. F. Young, J. S. Preston, and H. M. van Driel, Phys. Rev. B **27**(2), 1141(1983).
3. С. А. Ахманов, В. И. Емельянов, Н. И. Коротеев, В. Н. Семиногов, Успехи физических наук **147**(12), 675 (1985).
4. J. Bonse, J. Kruger, S. Hohm, and A. Rosenfeld, Journal of Laser Applications **24**(4), 042006 (2012).
5. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, Л. В. Селезнев, Д. В. Синицын, В. И. Емельянов, Письма в ЖЭТФ **97**(3), 139 (2013).
6. S. I. Kudryashov, L. V. Nguyen, D. A. Kirilenko et al. (Collaboration), ACS Applied Nano Materials **1**(6), 2461 (2018).
7. I. G. Bessonova, P. I. Trofimov, P. I. Lazarenko, D. A. Kirilenko, N. A. Bert, S. A. Kozyukhin, and I. S. Sinev, J. Phys. Conf. Ser. **2086**(1), 012170 (2021).
8. J. Bonse and S. Graf, Laser Photonics Rev. **14**(10), 2000215 (2020).
9. A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, L. V. Seleznev, D. V. Sinitsyn, A. E. Ligachev, and Y. R. Kolobov, Laser Phys. Lett. **10**(5), 056004 (2013).
10. Д. Бэтчелор, *Введение в динамику жидкости*, Регулярная и хаотическая динамика, М. (2004).
11. N. A. Roberts, J. D. Fowlkes, K. Mahady, S. Afkhami, L. Kondic, and P. D. Rack, ACS Appl. Mater. Interfaces **5**(10), 4450 (2013).
12. Y. Wu, N. Dong, S. Fu, J. D. Fowlkes, L. Kondic, M. A. Vincenti, D. De Ceglia, and P. D. Rack, ACS Appl. Mater. Interfaces **6**(8),5835 (2014).
13. C. A. Hartnett, I. Seric, K. Mahady, L. Kondic, S. Afkhami, J. D. Fowlkes, and P. D. Rack, Langmuir **33**(33), 8123 (2017).
14. J. Koch, F. Korte, T. Bauer, C. Fallnich, A. Ostendorf, and B. N. Chichkov, Appl. Phys. A **81**, 325 (2005).
15. В. И. Емельянов, Д. А. Заярный, А. А. Ионин, И. В. Киселева, С. И. Кудряшов, С. В. Макаров, Ч. Т. Нгуен, А. А. Руденко, Письма в ЖЭТФ **99**(9), 601 (2014).
16. X. W. Wang, A. A. Kuchmizhak, X. Li, S. Juodkazis, O. B. Vitrik, Yu. N. Kulchin, V. V. Zhakhovsky, P. A. Danilov, A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, A. A. Rudenko, and N. A. Inogamov, Phys. Rev. Appl. **8**(4), 044016 (2017).
17. В. И. Емельянов, П. А. Данилов, Д. А. Заярный, А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, С. В. Макаров, А. А. Руденко, Д. И. Шикунов, В. И. Юровских, Письма в ЖЭТФ **100**(3), 163 (2014).

18. Y. Borodaenko, D. Pavlov, A. Cherepakhin et al. (Collaboration), Advanced Materials Technologies **9**(8), 2301567 (2024).
19. A. Borowiec and H. K. Haugen, Appl. Phys. Lett. **82**(25), 4462 (2003).
20. S. I. Kudryashov, T. Pflug, N. I. Busleev, M. Olbrich, A. Horn, M. S. Kovalev, and N. G. Stsepuro, Opt. Mater. Express **11**(1), 1 (2020).
21. S. I. Kudryashov, A. A. Nastulyavichus, I. N. Saraeva, A. A. Rudenko, D. A. Zayarny, and A. A. Ionin, Applied Surface Science **519**, 146204 (2020).
22. P. G. De Gennes, F. Brochard-Wyart, and D. Quere, *Capillarity and wetting phenomena: drops, bubbles, pearls, waves*, Springer Science & Business Media, N.Y. (2003).
23. М. Е. Степанов, С. А. Хоркина, А. И. Аржанов, А. В. Карабулин, В. И. Матюшенко, А. В. Наумов, Письма в ЖЭТФ **120**(4), 231 (2024).
24. Н. А. Иногамов, Ю. В. Петров, В. А. Хохлов, В. В. Жаховский, Теплофизика высоких температур **58**(4), 689 (2020).
25. В. П. Вейко, Ю. Ю. Карлагина, В. В. Романов, Р. М. Яцук, Е. Е. Егорова, Е. А. Зерницкая, А. И. Яременко, Г. Н. Черненко, С. Г. Горный, Г. В. Одинцова, Фотоника **14**(5), 462 (2020).
26. Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский, В. А. Хохлов, Письма в ЖЭТФ **115**(1), 20 (2022).
27. Д. А. Кочуев, А. С. Черников, Д. В. Абрамов, А. А. Вознесенская, Р. В. Чкалов, К. С. Хорьков, Журнал технической физики **93**(4), 473 (2023).