Письма в ЖЭТФ, том 97, вып. 10, с. 687 – 692 © 2013 г. 25 мая

Фокусировка интенсивных поверхностных электромагнитных волн фемтосекундной длительности

М. А. Губко, А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, С. В. Макаров[1], *А. А. Руденко, Л. В. Селезнев, Д. В. Синицын*

Физический институт им. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 15 марта 2013 г.

Экспериментально и теоретически исследовано нелинейное распространение по поверхности алюминия интенсивной поверхностной электромагнитной волны, возбужденной фемтосекундным лазерным импульсом с плотностью энергии порядка или выше порога абляции материала, в режиме ее фокусировки кольцевой поверхностной линзой. Показана принципиальная возможность увеличения в фокусе такой линзы локальной плотности энергии до двух порядков. Экспериментально наблюдается формирование в результате фокусировки поверхностной электромагнитной волны в фокусе линзы поверхностных наноструктур.

DOI: 10.7868/S0370274X13100093

1. В последние годы фокусировка поверхностных электромагнитных волн (ПЭВ) в плазмонных структурах привлекает все большее внимание с точки зрения эффективного ввода/вывода излучения в волноводах [1], усиления нелинейных оптических процессов [2], а также из-за возможности создания высокочувствительных молекулярных сенсоров [3]. Фокусировка ПЭВ производится путем концентрации поля на конце сужающегося волновода [4] с использованием так называемых плазмонных линз, представляющих собой упорядоченный определенным образом массив из источников ПЭВ (наноразмерных отверстий [1], щелей [5] и т.д.), формированием на пути распространения ПЭВ диэлектрической структуры с неоднородным распределением приращения фазы волны [6]. В отличие от усиления локального электромагнитного поля на наночастицах, которые имеют дискретный спектр плазмонных резонансов [7], фокусирование ПЭВ ограничено по спектру только УФ-областью. Это делает его удобным для различных применений, в том числе для использования широкополосных источников света. Однако рассмотренные ранее режимы возбуждения и распространения ПЭВ предполагали главным образом слабоинтенсивные поля, не вызывающие существенного мгновенного изменения оптических постоянных волновода, а также плавления или абляции его вещества. С другой стороны, в настоящее время в области лазерной физики высоких энергий существует значительный интерес к нано/микроразмерным мишеням, перспективным для получения потоков высокоэнергетичных частиц (ионов или электронов) при использовании сравнительно невысоких интенсивностей падающего лазерного излучения [8].

В настоящей работе исследуется фокусировка интенсивной ПЭВ, возбужденной ультракоротким (фемтосекундным) лазерным импульсом (УКИ) с плотностью энергии, превышающей пороги плавления и абляции материала, плазмонной линзой в режиме самовоздействия. Данный режим интересен тем, что нагрев электронной подсистемы металла во время распространения и фокусировки ПЭВ приводит к значительному изменению его диэлектрической проницаемости. Последнее вносит существенный вклад в эффективность усиления суммарного электромагнитного поля в фокусирующем устройстве. Кроме того, ультракороткая длительность падающего импульса и возбужденных им ПЭВ позволяет возникнуть устойчивому наномасштабному интерференционному распределению плотности энергии до начала протекания процессов плавления или абляции. Это приводит к формированию необычных поверхностных наноструктур.

2. В качестве источника фемтосекундных лазерных импульсов использовалась Ti:сапфировая лазерная установка с регенеративным и многопроходовыми усилителями (Авеста Проект), генерирующая линейно поляризованные ИК (центральная длина волны 744 нм) лазерные импульсы с поперечным распределением интенсивности, соответствующим моде TEM_{00}, с длительностью $\tau \approx 100$ фс (на полувысоте) и энергией до 8 мДж. Энергия в импульсе регулировалась с помощью дифракционного ослабителя и измерялась калориметром (Ophir). Лазерное излуче-

[1] e-mail: makarov_sergey_vl@mail.ru

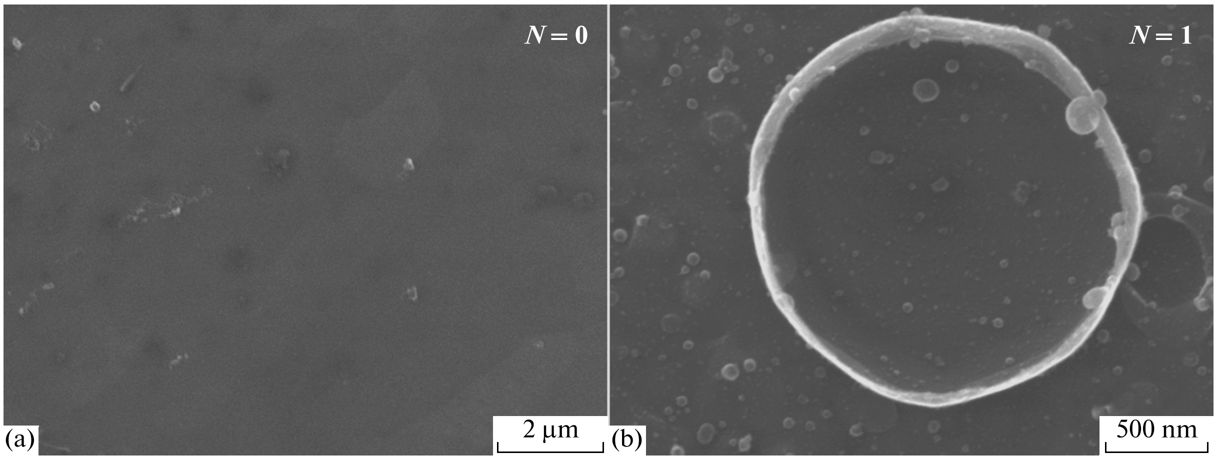

Рис. 1. СЭМ-изображения начальной шероховатой поверхности алюминия (a) и типичного (одного из множества) микрократера, образующегося после поглощения одного УКИ с $F_0 \approx 0.92$ Дж/см^2 (b). Буквой N обозначается число УКИ, поглощенных поверхностью

ние фокусировалось на поверхности образца алюминия оптического качества (рис. 1a) при помощи сферической стеклянной линзы с фокусным расстоянием $f = 11.5$ см в пятно диаметром 0.7 мм по уровню плотности энергии $1/e$. Во время лазерного воздействия образец размещался в атмосфере воздуха на трехмерной моторизированной микроподвижке. Временная задержка между поглощенными УКИ составляла ~ 10 с. Визуализация рельефа поверхности проводилась при помощи сканирующего электронного микроскопа (СЭМ).

3. На рис. 1b представлено СЭМ-изображение поверхности алюминия после ее взаимодействия с единичным УКИ с пиковой плотностью энергии $F_0 \approx \approx 0.92$ Дж/см^2. Выбранное значение плотности энергии находится ниже порога фрагментационной абляции алюминия ($F_f \approx 1.27$ Дж/см^2 [9]), но выше порога абляции откольного типа (*spallation*) ($F_s \approx \approx 0.7$ Дж/см^2 [10]). При одноимпульсном воздействии на периферии фокального гауссова пятна на поверхности (вне кратера) наблюдается значительное количество микрократеров в виде круглых колец с бортиком по окружности (рис. 1b) со средней поверхностной плотностью $\sim 10^7$ ед./см^2, варьирующейся в зависимости от локальной падающей плотности энергии $F_i \leq F_s$. Механизм формирования микрократеров, по-видимому, связан с гомогенной нуклеацией паровых пузырьков в расплаве вблизи поверхности чуть ниже порога откольной абляции [11], детально исследованной для кремния [12] и арсенида галлия [13]. Данные микрократеры были изучены с помощью СЭМ под разными углами зрения. Это позволило измерить их средние параметры (с указанием статистического разброса значений: радиус $R_0 \approx 0.75 \pm 0.50$ мкм, глубина $h \approx 100 \pm 50$ нм, толщина и высота кромки кольца $\Delta \approx 100 \pm 30$ нм.

Известно, что такая кольцевая структура на поверхности металла при ее облучении электромагнитным излучением является источником ПЭВ, возбуждаемой на кромке и сходящейся к центру вследствие фокусировки [5]. Однако при существенной интенсивности ПЭВ ее распространение становится нелинейным, так как при распространении к центру кольца ПЭВ нагревает электронную подсистему материала и тем самым меняет мгновенные оптические свойства металла. Характерная зависимость диэлектрической проницаемости алюминия от F_i для ИК УКИ [14] представлена на рис. 2a.

Для оценки величины суммарной плотности энергии в центре фокусирующего кольца рассмотрим распространение возбужденных ПЭВ от его кромки к центру с учетом самовоздействия из-за интенсивного нагрева электронов металла. Возбуждение ПЭВ происходит при рассеянии падающей на поверхность металла световой волны на кромке кольца. Оно осуществляется с коэффициентом преобразования C (по плотности энергии), который в нерезонансном случае относительно невысок [15]. При распространении ПЭВ вдоль поверхности происходит ее экспоненциальное затухание из-за поглощения энергии металлом [16]. С ростом глубины проникновения ПЭВ в металл плотность энергии линейно спадает. В цилиндрической геометрии фокусировки ПЭВ ее интенсивность нарастает как r^{-1} при $r \to 0$ [1, 3]. Таким обра-

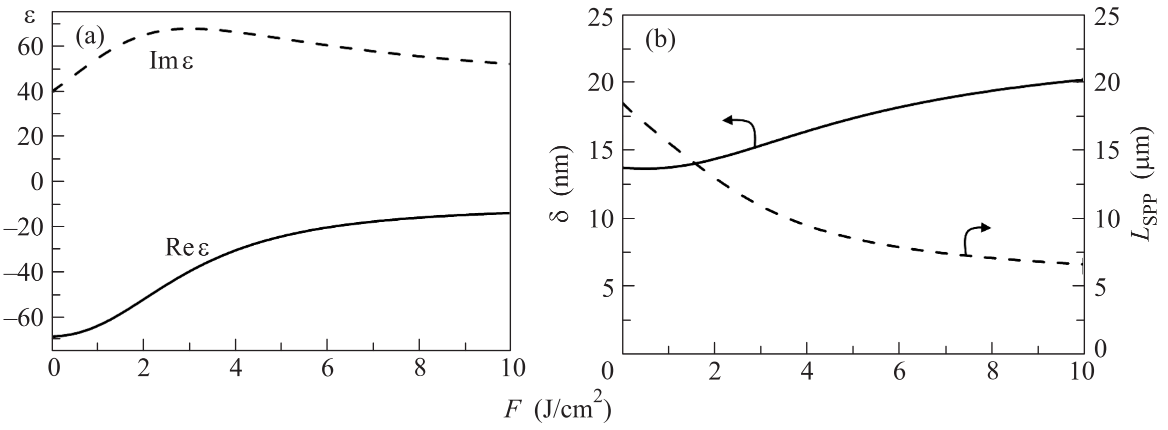

Рис. 2. (a) – Зависимость комплексной диэлектрической проницаемости металла ε от F [14]. (b) – Зависимости глубины проникновения δ ПЭВ в металл и длины L_{SPP} распространения ПЭВ от F, рассчитанные с использованием данных рис. (a)

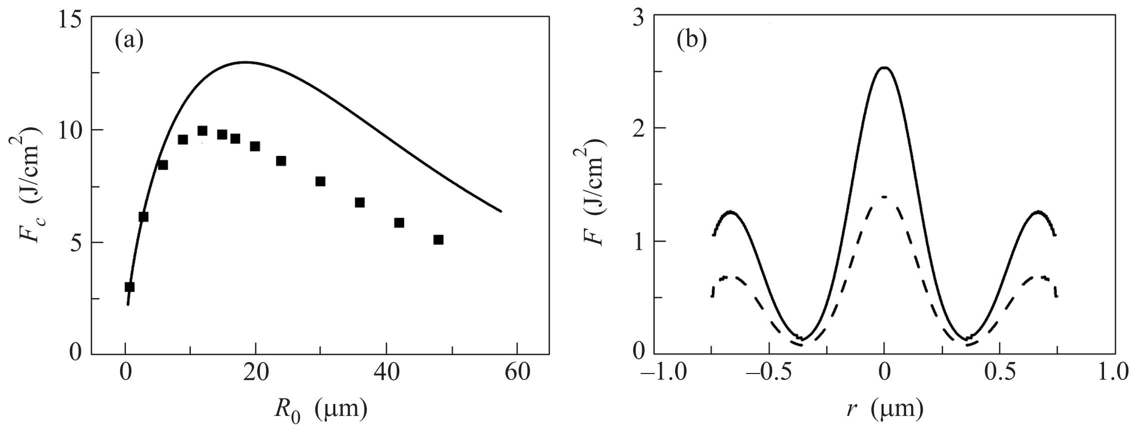

Рис. 3. (a) – Расчетные зависимости плотности энергии в центре кольца F_c для $F_i = 0.92$ Дж/см^2 от его радиуса для постоянной (линия) и меняющейся (квадраты) ε. (b) – Расчетные распределения плотности энергии внутри кольца с радиусом $R_0 = 0.75$ мкм для $F_i = 0.92$ Дж/см^2 (сплошная линия) и 0.5 Дж/см^2 (штриховая линия) вдоль направления, сонаправленного с линейной поляризацией падающего света и проходящего через центр кольца

зом, зависимость локальной плотности энергии ПЭВ от радиальной координаты r имеет вид

$$F_{\mathrm{SPP}} = CF_i \frac{R_0}{r}\frac{\delta_0}{\delta}\exp\left(-\frac{r}{L_{\mathrm{SPP}}}\right), \tag{1}$$

где R_0 – радиус кольца, δ_0 и δ – характерные начальная и текущая глубины затухания ПЭВ в глубь металла на кромке и вдоль радиуса кольца соответственно, L_{SPP} – характерная длина затухания ПЭВ, учитывающая только потери на нагрев металла. Основные характеристики распространения ПЭВ (δ и L_{SP}) на границе раздела металл/воздух выражаются как [16]

$$\delta = \frac{1}{2\mathrm{Re}\sqrt{k_{\mathrm{SPP}}^2 - \varepsilon k_0^2}}, \tag{2}$$

$$k_{\mathrm{SPP}} = k_0\sqrt{\frac{\varepsilon}{\varepsilon+1}}, \tag{3}$$

$$L_{\mathrm{SP}} = \frac{1}{2\mathrm{Im}\, k_{\mathrm{SPP}}}, \tag{4}$$

где $k_0 = 2\pi/\lambda$ – волновой вектор УКИ в вакууме, k_{SPP} – комплексный волновой вектор ПЭВ, ε – диэлектрическая проницаемость металла. Значения координаты r меняются в пределах от R_0 до π/k_{SPP}. Коэффициент преобразования C зависит главным образом от размеров и формы источника ПЭВ. Он был численно рассчитан методом конечных элементов для плоской поверхности алюминия с расположенным на ней бесконечным цилиндром с радиусом 100 нм $\approx \Delta$ и направлением оси вращения параллельно плоскости поверхности. В случае перпендикулярной взаимной ориентации поляризации нормально падающего излучения и оси вращения цилиндра коэффициент преобразования составил 0.1. Рассмотренный модельный случай соответствует геометрии кромки колец, полученных после первого поглощенного УКИ (рис. 1b).

В случае падающего на кольцо когерентного излучения с линейной поляризацией максимально эффективное возбуждение ПЭВ производится теми участками кромки кольца, которые перпендикулярны к направлению поляризации. Однако существенный вклад дают также и другие участки кромки кольца, которые занимают его большую часть [1, 3, 5]. Следовательно, при распространении возбужденных этими областями ПЭВ к центру кольца осуществляется концентрация энергии подобно случаю, описываемому формулой (1), с той лишь разницей, что в центре из-за интерференции распространяющихся навстречу друг другу сфокусированных ПЭВ и падающего излучения может происходить резкое увеличение плотности энергии на масштабе длины волны. С учетом сфазированности ПЭВ и падающего излучения [17] можно оценить распределение плотности энергии внутри кольца при помощи соотношения для интерференции трех волн:

$$F(r) = F_i + 4F_{\mathrm{SPP}} \cos^2[k_{\mathrm{SPP}}(R_0 - r)] + \\ + 4\sqrt{F_{\mathrm{SPP}} F_i} \cos[k_{\mathrm{SPP}}(R_0 - r)]. \tag{5}$$

В условиях самовоздействия ПЭВ при фокусировке будет происходить неоднородное по пространству изменение зависящих от ε параметров в уравнении (1). Это главным образом параметры δ и L_{SPP}, которые существенно меняют свои значения в диапазоне $F = (1\text{–}10)$ Дж/см^2 (рис. 2b). В данном случае оценки по формуле (1) проводились путем разбиения пути распространения ПЭВ от края кольца ($r = R_0$) до области дифракционного предела ($r = \pi/k_{\mathrm{SPP}}$) на шаги величиной 10 нм. Значение $\varepsilon(F)$ на каждом промежутке соответствовало значению $F = F_i + F_{\mathrm{SPP}}$ на предыдущем промежутке и имело вид зависимости, представленной на рис. 2b. В области $0 < r < \pi/k_{\mathrm{SPP}}$ значение F_{SPP} полагалось постоянным и равным $F_{\mathrm{SPP}}(r = \pi/k_{\mathrm{SPP}})$. Далее полученное распределение $F_{\mathrm{SPP}}(r)$ использовалось в формуле (5).

Самовоздействие ПЭВ существенно проявляет себя при значениях радиуса кольца, много больших длины ПЭВ, когда влияние экспоненциального множителя в формуле (1), содержащего $L_{\mathrm{SPP}}[\varepsilon(F)]$, становится преобладающим. На рис. 3a приведено сравнение зависимостей от радиуса кольца плотностей энергии в его центре $F_c \equiv F(r = 0)$, рассчитанных по формуле (5) с учетом и без учета (для $\varepsilon(F = 0)$) меняющихся оптических свойств $\varepsilon(F)$. С целью более наглядного представления в широком диапазоне значений R_0 осцилляции сглажены, т.е. во всех точках принято $\cos(k_{\mathrm{SPP}} R_0) = 1$. Видно, что учет зависимости $\varepsilon(F)$ приводит к существенному (на 30%) смещению в сторону меньших значений радиуса кольца, при котором при заданном F_i достижима максимально возможная F_c. Кроме того, значительно (на 20%) уменьшается и само максимально возможное значение F_c по сравнению со случаем "холодной" поверхности, который ранее был рассмотрен на примере серебра [5].

Полученные результаты моделирования представляют интерес для решения задачи увеличения эффективности процесса фокусировки сильных электромагнитных полей в виде ПЭВ с помощью рассматриваемого типа линз. Они демонстрируют возможность десятикратного увеличения локальной плотности энергии в режиме относительно малого коэффициента связи C, который может быть увеличен практически до 1, например путем фокусировки на множестве концентрических колец со специально подобранным соотношением радиусов [18]. Полагаясь на оценки из формулы (5), при $C \approx 1$ для оптимального R_0, можно ожидать для кольцевой алюминиевой линзы увеличения плотности энергии почти на два порядка. Для достижения еще больших значений F_c целесообразно использовать металлы, обеспечивающие большие длины пробега ПЭВ.

На рис. 3b для различных F_i приведены рассчитанные по формуле (5) распределения плотности энергии внутри кольца фиксированного радиуса $R_0 = 0.75$ мкм, соответствующего наблюдаемому нами среднему экспериментальному значению после поглощения единичного УКИ (рис. 1b). Важно отметить, для $F_i = 0.5$ Дж/см^2 значение $F_c = 1.38$ Дж/см^2 в центре кольца немного превышает порог фрагментационной абляции алюминия ($F_f \approx 1.27$ Дж/см^2), в то время как в остальных областях локальная плотность энергии ниже этого порога. При $F_i = 0.92$ Дж/см^2 существенное превышение порога фрагментационной абляции происходит в центральной области уже большего диаметра (около 0.5 мкм). В обоих случаях отношение F_c/F_i примерно одинаково и равно 2.75, так как при малых значениях R_0 зависимость F_c от F_i является почти линейной.

В результате возбуждения и фокусировки ПЭВ внутри кольцеобразных микрократеров на поверхности алюминия их абляция может существенно отличаться от абляции плоской поверхности материала при тех же параметрах УКИ. Действительно, воздействие второго УКИ на поверхность алюминия, содержащую микрократеры (один из которых изобра-

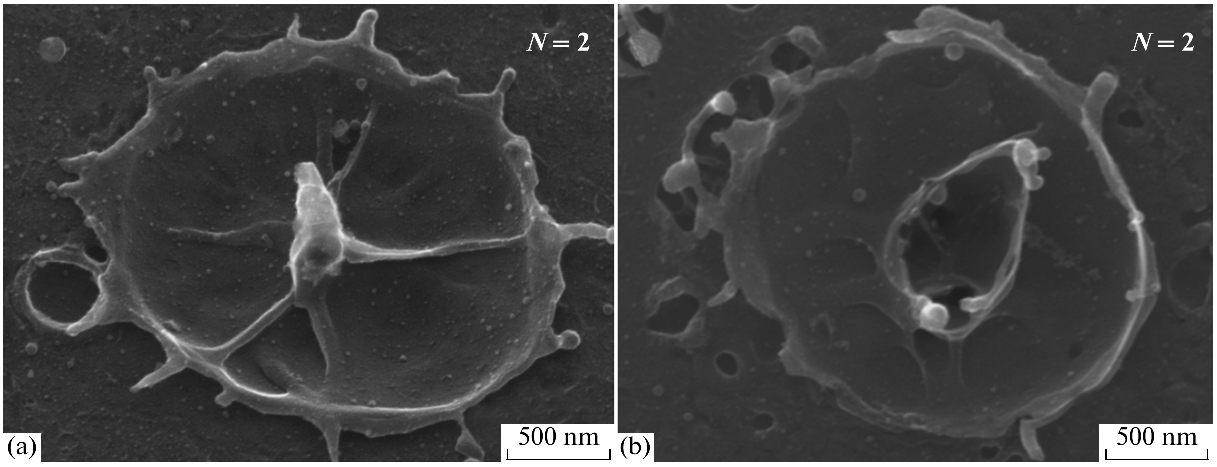

Рис. 4. СЭМ-изображения микрократеров, полученных после облучения поверхности алюминия двумя последовательными УКИ с пиковой плотностью энергии $F_0 \approx 0.92$ Дж/см^2. (a) – Периферийная область лазерного пучка с локальной плотностью энергии $F_i \approx 0.5$ Дж/см^2 (вид под углом 30°). (b) – Центральная область лазерного пучка, $F_i \approx F_0$. Буквой N обозначается число УКИ, поглощенных поверхностью

жен на рис. 1b), дает принципиально иные профили кратеров, качественно согласующиеся с расчетными распределениями плотности энергии внутри микрократера (кольца) того же размера (рис. 3b). Так, на рис. 4 показаны типичные микрократеры, формирующиеся в областях лазерного пучка, соответствующих $F_i = 0.5$ Дж/см^2 (рис. 4a) и 0.92 Дж/см^2 (рис. 4b). Видно, что в обоих случаях в области предполагаемого центрального максимума плотности энергии происходит локальный выброс вещества, завершенный (с образованием внутреннего нанократера) на рис. 4b и замороженный в виде наноструи на рис. 4a. Основным механизмом, отвечающим за формирование изображенных на рис. 4 наноструктур, по-видимому, является генерация мощных волн сжатия в приповерхностном слое расплава алюминия ($F_c \approx$ ≈ 1.38 Дж/см^2 соответствует уровню давления сжатия около 1 ГПа, а $F_c \approx 2.54$ Дж/см^2 – около 10 ГПа [9]) из-за действия на него давления отдачи разлетающегося поверхностного слоя закритического флюида. В процессе ударного воздействия давления отдачи на поверхность расплава образуется нанокаверна, которая после разгрузки давления отдачи схлопывается с выбросом наноструи. Для мелкомасштабной наноструи расплава на рис. 4a выталкивающее давление оказывается ниже, а охлаждение и затвердевание протекают быстрее (что препятствует отрыву струи от поверхности) по сравнению с более крупной наноструей, которая частично или полностью выбрасывается с образованием внутреннего нанократера (рис. 4b). В рамках данного механизма формирование мелкомасштабной наноструи на рис. 4a при $F_i = 0.5$ Дж/см^2 указывает на незначительное превышение в фокусе линзы порога фрагментационной абляции ($F_c \geq F_f \approx 1.27$ Дж/см^2). Таким образом, реальное увеличение локальной плотности энергии немного превышает значение $F_f/F_i \approx 2.5$. Это хорошо согласуется с расчетным значением 2.75.

Наноструктуры схожего типа (наноструи, но без окружающих их микрократеров) ранее были получены при одноимпульсном воздействии остросфокусированным УКИ только на поверхности тонких пленок (как структурированных [19], так и неструктурированных [20]), что также сопровождалось формированием под наноструями субмикронного полусферического полого пьедестала (*nanobump*). В наших экспериментах таких пьедесталов обнаружено не было, так как использовались объемные образцы алюминия.

4. Таким образом, в настоящей работе впервые исследована фокусировка интенсивных ПЭВ, возбужденных в кольцевой линзе на поверхности алюминия при помощи УКИ с плотностью энергии, сопоставимой с порогом абляции поверхности материала. В области фокусировки отмечено существенное ($\approx$ в 3 раза) увеличение локальной плотности энергии ПЭВ, которое при оптимальных условиях (максимальный коэффициент преобразования и оптимальный радиус кольцевой линзы, расположенной на поверхности металла с низкими потерями) может превысить два порядка величины. Самовоздействие ПЭВ при ее распространении, связанное с изменением диэлектрической проницаемости металла, приводит к существенному уменьшению как максимально

достижимой плотности энергии в фокусе, так и оптимального радиуса фокусирующего кольца. В зависимости от условий возбуждения ПЭВ увеличение ее локальной плотности энергии в фокальной области линзы позволяет превысить порог фрагментационной абляции алюминия на разных пространственных масштабах. Это приводит к формированию в центре микрократера разнообразных поверхностных наноструктур.

Примечательно, что использование данного способа возбуждения и фокусировки интенсивных ПЭВ возможно не только на поверхности традиционных для плазмоники металлов (серебро, золото, алюминий), но и на поверхностях материалов с широкой запрещенной зоной ввиду металлизации их приповерхностного слоя под действием мощных УКИ (см., например, [21]). Однако для достижения высокой концентрации энергии необходимо, чтобы затухание ПЭВ при этом было относительно невелико. С технологической точки зрения представленный метод создания плазмонных линз и поверхностных наноструктур относительно прост. Он позволяет покрывать ими большие участки поверхности с присущей лазерной технологии скоростью.

1. L. Yin, V. K. Vlasko-Vlasov, J. Pearson et al., Nano Lett. **5**, 71399 (2005).
2. I.-Y. Park, S. Kim, J. Choi et al., Nature Photonics **5**, 677 (2011).
3. J. T. Bahns, A. Imre, V. K. Vlasko-Vlasov et al., Appl. Phys. Lett. **91**, 081104 (2007).
4. M. I. Stockman, Phys. Rev. Lett. **93**, 137404 (2004).
5. Z. Liu, J. M. Steele, W. Srituravanich et al., Nano Lett. **5**, 91726 (2005).
6. E. A. Bezus, L. L. Doskolovich, N. L. Kazanskiy et al., J. Opt. **12**, 015001 (2010).
7. В. В. Климов, *Наноплазмоника*, М.: Физматлит, 2009.
8. В. Ю. Быченков, В. Ф. Ковалев, Письма в ЖЭТФ **94**, 101 (2011).
9. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, С. В. Макаров и др., Письма в ЖЭТФ **94**(1), 35 (2011).
10. С. И. Кудряшов, В. И. Емельянов, Письма в ЖЭТФ **73**, 751 (2001).
11. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, А. Е. Лигачев и др., Письма в ЖЭТФ **94**(4), 289 (2011).
12. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, Л. В. Селезнев и др., ЖЭТФ **143**(3), 403 (2013).
13. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, Л. В. Селезнев и др., Письма в ЖЭТФ **94**(10), 816 (2011).
14. Е. В. Голосов, А. А. Ионин, Ю. Р. Колобов и др., Российские нанотехнологии **3–4**(6), 82 (2011).
15. S. A. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications*, Springer, N.Y., 2007.
16. H. Raether, *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings*, Springer, Berlin, 1988.
17. С. А. Ахманов, В. И. Емельянов, Н. И. Коротеев, В. Н. Семиногов, УФН **147**, 675 (1985).
18. W. Chen, D. C. Abeysinghe, R. L. Nelson, and Q. Zhan, Nano Lett. **9**, 4320 (2009).
19. V. K. Valev, D. Denkova, X. Zheng et al., Adv. Mater. **24**, 29 (2012).
20. F. Korte, J. Koch, and B. N. Chichkov, Appl. Phys. A **79**(4), 879 (2004).
21. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, Л. В. Селезнев и др., Письма в ЖЭТФ **97**(3–4), 139 (2013).