Письма в ЖЭТФ, том 101, вып. 5, с. 382 – 389

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*

[×] *Университет информационных технологий, механики и оптики, 197101 С.-Петербург, Россия*

[○] *МГУ 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 ($N \gg 10$), 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 ($\tau \approx 100$ фс) лазерные импульсы, генерируемые титан-сапфировой лазерной системой с регенеративным и многопроходовым усилителями (Авеста Проект) с частотой следования импульсов 10 Гц и длиной волны $\lambda \approx 744$ нм. Максимальная энергия в импульсе составляла 5 мДж в TEM_{00}-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 атомно-силового микроскопа (АСМ, 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 $F > 0.5$ Дж/см^2 и $N > 1$ происходят деградация первичных ППС и формирование разупорядоченной наношероховатости с амплитудой $h > 100$ нм. В условиях $0.2 < F < 0.4$ 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. 1e и f). При $F \leq 0.2$ 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 $0.5{-}0.9$ Дж/см^2, примерно соответствуя порогу откольной абляции $F_{\rm spall} \approx 0.7$ Дж/см^2 для ровной поверхности алюминия [21, 22], то в минимумах рельефа ППС формируется нанопена (рис. 1a), что находится в хорошем согласии с предсказаниями молекулярной динамики [23]. Глубина возникающих за

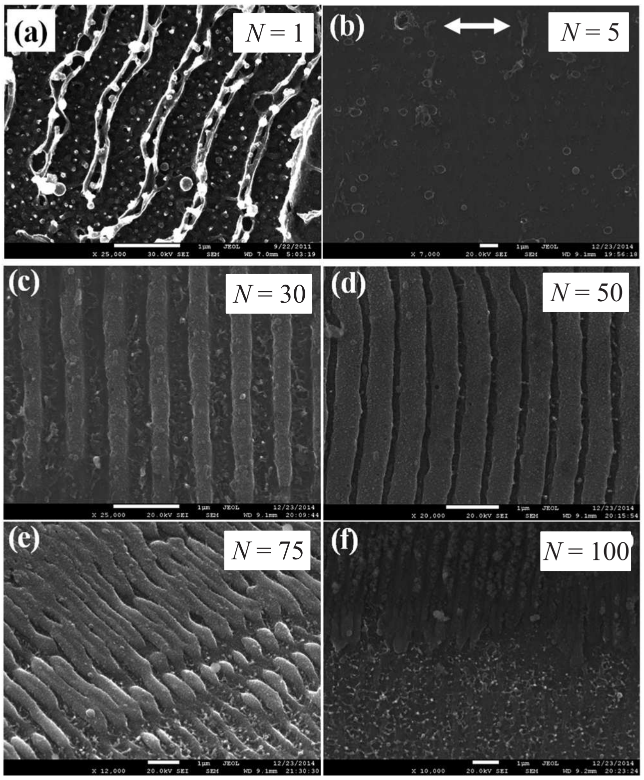

Рис. 1. СЭМ изображения поверхности алюминия после воздействия УКИ при следующих условиях: $N = 1$ и $F \approx 0.9$ Дж/см^2 (a), $F \approx 0.3$ Дж/см^2 (b–f) при соответствующих экспозициях N. Двойная стрелка указывает направление поляризации.

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 $0.2 < F < 0.4$ 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 $\boldsymbol{\nabla} \times (\boldsymbol{\nabla} \times \mathbf{E}) - (\mathbf{k}_0)^2 \varepsilon \mathbf{E} = 0$, где $\mathbf{k}_0$ – волновой вектор падающего излучения в вакууме, $\boldsymbol{\nabla}$ – 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 $\omega = 2.53 \cdot 10^{15}$ рад/с, плазменная частота $\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m^*}} \approx 1.8 \cdot 10^{16}$ рад/с при эффективной массе электрона $m^* \approx 1.5m$ и электронной плотности $N \approx 1.6 \cdot 10^{23}$ см$^{-3}$ для алюминия [24]. Время столкновения электронов τ_{ee} в рамках приближения случайных фаз определяется как [25]

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

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

Полученные зависимости $\mathrm{Re}\,\varepsilon$ и $\mathrm{Im}\,\varepsilon$ 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

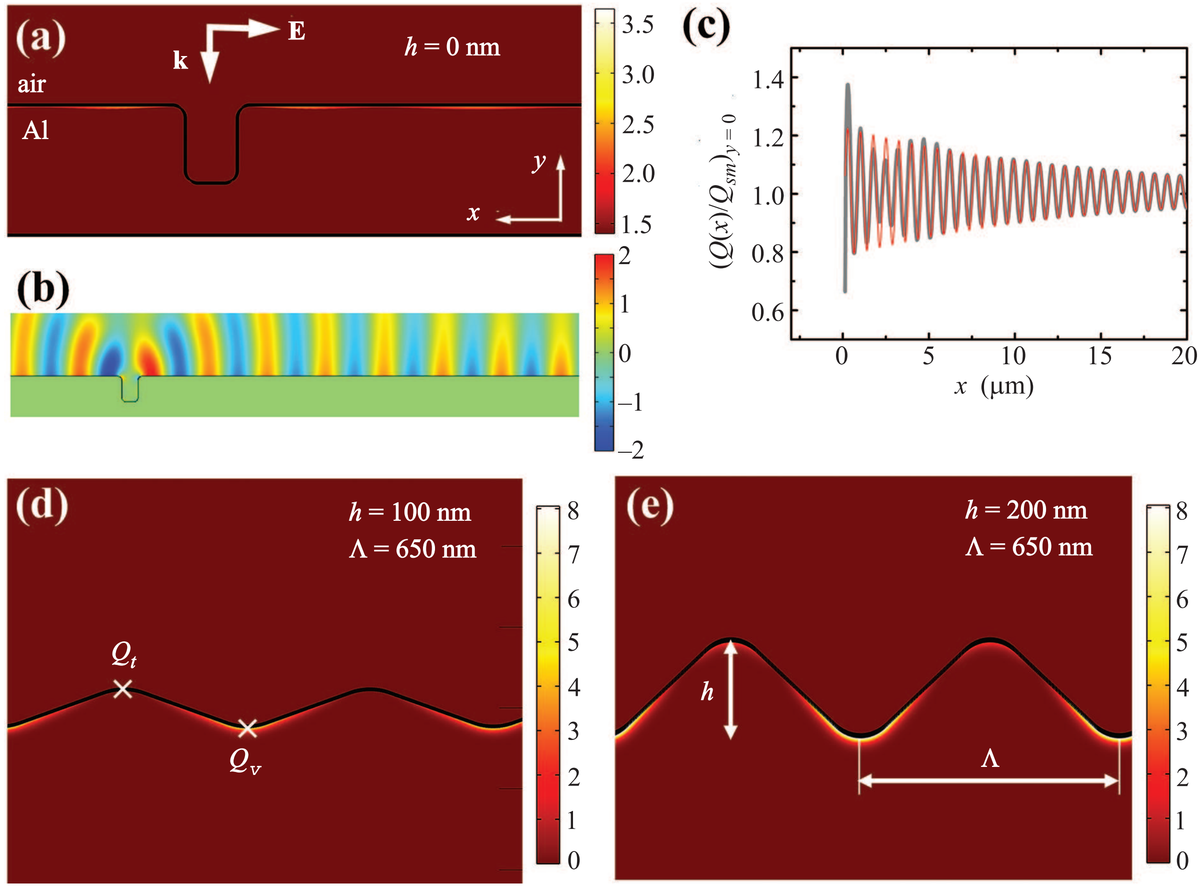

Рис. 2. Рассчитанные распределения поглощенной энергии Q падающей электромагнитной волны на поверхности возле нанобороздки (a) и на решетках (d, e) (в условных единицах). (b) – Распределение E_y-компоненты электрического поля (в условных единицах) для задачи, соответствующей панели a–c. Одномерное распределение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

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

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 $|\mathrm{Re}\,\varepsilon| \gg 1$ или $\mathrm{Im}\,\varepsilon \gg 1$ волновой вектор ПЭВ $k_{\mathrm{SPP}} = k_0\sqrt{\varepsilon/\varepsilon+1} \approx k_0$, где k_0 – модуль волнового вектора света в вакууме. Тем не менее выполнение условия $\mathrm{Re}\,\varepsilon < -1$ 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, что соответствует экспериментальной ситуации на рис. 1a. На рис. 2a 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 y-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. 2c) удовлетворительно аппроксимируется выражением, описывающим интерференцию падающей ЭМ-волны и ПЭВ, возбужденной от нанобороздки: $\left[\frac{Q(x)}{Q_{sm}}\right] = 1 + Ae^{-x/L_{\mathrm{SPP}}}\cos[\mathrm{Re}(k_{\mathrm{SPP}})x + \varphi]$, 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 $\mathrm{Re}\, k_{\rm SPP} = 8.45\,\text{мкм}^{-1}$, фазовая добавка $\varphi = -0.8$. Знаменатель в экспоненте в аппроксимационной формуле характеризует длину пробега ПЭВ, которую можно также оценить аналитически: $L_{\rm SPP} = (2\mathrm{Im}\, k_{\rm SPP})^{-1}$, где $\mathrm{Im}\, k_{\rm SPP}$ – мнимая часть волнового вектора ПЭВ $k_{\rm SPP} = k_0\sqrt{\varepsilon/\varepsilon+1}$. Аналитическая оценка затухания ПЭВ при $\varepsilon(T_e = 3\,\text{эВ}) = -59.5 + i60.2$ 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. 1a). 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/см^2 не приводит к превышению порога откольной абляции ($F_{\rm spall} \approx 0.7$ Дж/см^2 [21]). Вместе с тем облучение данной бороздки УКИ с плотностью энергии 0.9 Дж/см^2 (рис. 1a) с учетом усиления должно приводить к увеличению локальной плотности энергии в максимумах интерференции до 1.1 Дж/см^2, 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 $\varepsilon(T_e = 3\,\text{эВ}) = -59.5 + i60.2$ происходит неоднородный нагрев: значения поглощенной энергии в долинах (Q_v), как правило, превышают 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 $\varepsilon(T_e = 3\,\text{эВ}) = -59.5 + i60.2$ при $\lambda = 744$ нм представлен на рис. 3a. Видно, что в диапазоне $h = (0{-}250)$ нм для $\Lambda \le \lambda$ имеем $\zeta > 0$. Из данного рисунка также видно, что при условии $\Lambda \le \lambda$ каждая зависимость $\zeta(h)$ имеет выраженный максимум, который смещается в сторону больших значений h с уменьшением периода решетки Λ. Важно отметить, что при $\Lambda \ge \lambda$ на зависимости $\zeta(h)$ нет максимума, а $\zeta \le 0$. Это говорит о том, что с ростом числа лазерных импульсов N и сопутствующим ростом h возможно развитие только субволновых решеток, т.е. $\Lambda \le \lambda$.

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. 1a). 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. 3c 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. 3a).

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 $k(h) = k_{\rm SPP} + \Delta k(h)$, где

$$\Delta k(h) = h^2 \frac{\omega_0^3}{c^3} \int d^2\mathbf{k} g(\mathbf{k}-\mathbf{k}_0) A(\mathbf{k},\mathbf{k}_0) + + ih^2 \frac{\omega_0^5}{c^5} \int_0^{2\pi} d\varphi g(\mathbf{k}-\mathbf{k}_0) B(\varphi,\mathbf{k}_0), \tag{3}$$

$$A(\mathbf{k},\mathbf{k}_0) = \frac{c^7}{\omega_0^7} \frac{k_0^6}{\sqrt{-\varepsilon_1\varepsilon_2}} \frac{1}{k_0^2 - k^2} \times$$

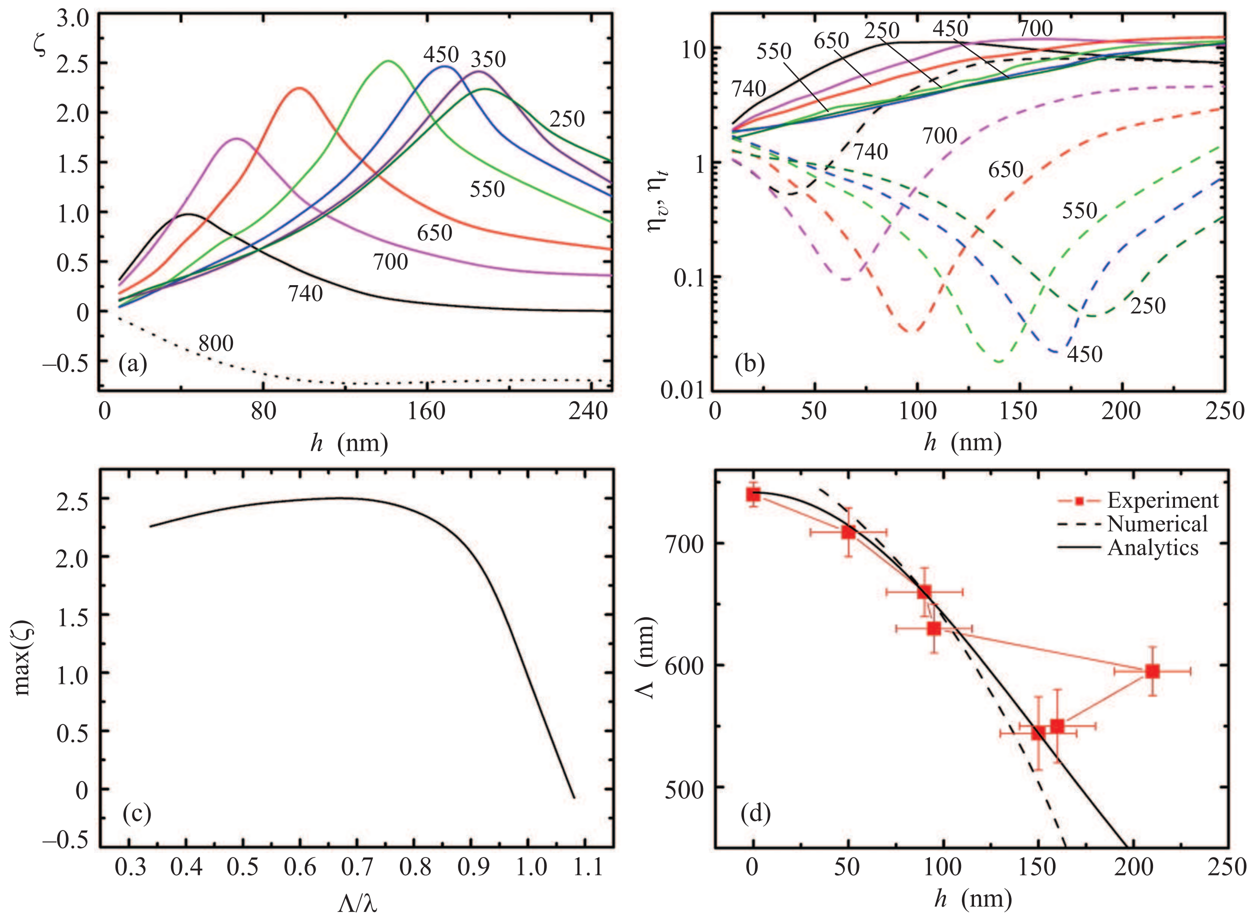

Рис. 3. (a) Численно рассчитанная зависимость коэффициента обратной связи $\zeta = \log_{10}(Q_v/Q_t)$ от амплитуды ППС h для различных периодов Λ (приведены в нм) при $\lambda = 744$ нм. (b) – Численно рассчитанные коэффициенты усиления поглощенной энергии в долинах $\eta_v = Q_v/Q_{sm}$ (сплошные линии) 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)

$$\times \left[\frac{-ik_1k^2}{\varepsilon_1}cos^2\varphi + \frac{2k^3\cos\varphi}{\sqrt{-\varepsilon_1\varepsilon_2}} + \frac{-ik_1k^2}{\varepsilon_2} - \right.$$

$$\left. -\frac{\omega_0^4}{c^4}\frac{k_0^2-k^2}{k_0^3}\sqrt{-\varepsilon_1\varepsilon_2} + i\frac{k_2}{\varepsilon_2}\left(k\cos\varphi - \frac{-ik_1\sqrt{\varepsilon_2}}{\sqrt{-\varepsilon_1}}\right)^2\right], \tag{4}$$

$$B(\varphi, \mathbf{k}_0) = \frac{c^7}{\omega_0^7}\frac{\pi}{-\varepsilon_1\varepsilon_2}(1-\cos\varepsilon)^2. \tag{5}$$

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

Расчеты по формулам (3)–(5) проводились для $\lambda = 2\pi/k_0 = 744$ нм, $\varepsilon_1 = \varepsilon(T_e = 3\,\text{эВ}) = -59.5 + i60.2$ и $\varepsilon_2 = 1$ в диапазоне $h = (0{-}250)$ нм. На рис. 3d дано сравнение полученной расчетной зависимости $2\pi/\mathrm{Re}[k(h)]$ с аналогичной зависимостью для положения максимума параметра ζ. Хотя формулы (3)–(5) не дают информации 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-

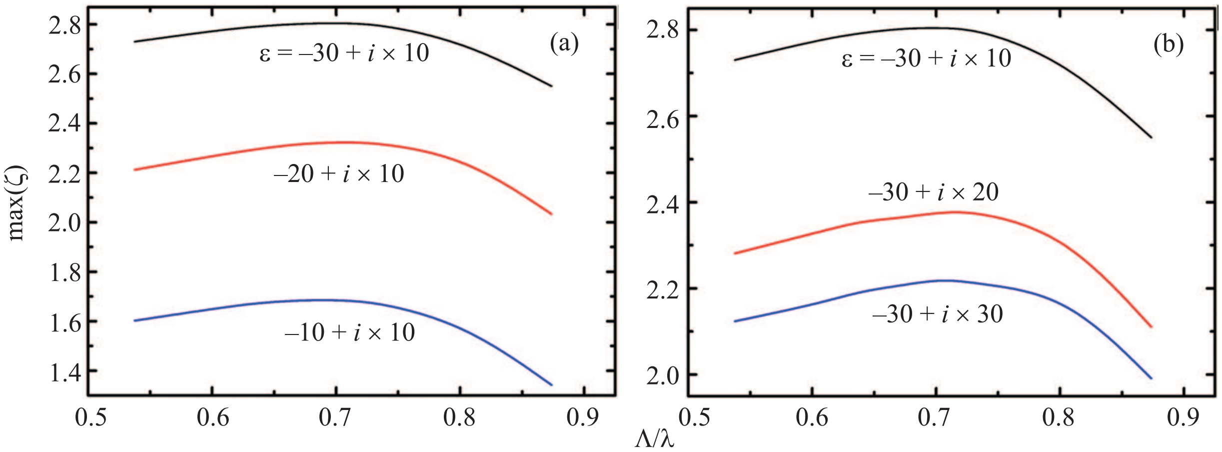

Рис. 4. Результаты численного моделирования с целью определения максимального коэффициента $\zeta = \log_{10}(Q_v/Q_t)$ для ППС с различными периодами при различных значениях комплексной диэлектрической проницаемости материала ε

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. 3a–c). 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 $\mathrm{Re}\,\varepsilon = -(10-30)$ (рис. 4a) и $\mathrm{Im}\,\varepsilon = (10-30)$ (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 $\mathrm{Re}\,\varepsilon/\mathrm{Im}\,\varepsilon$, с ростом которого происходит нелинейный рост $\max\{\zeta\}$. Действительно, соотношение $\mathrm{Re}\,\varepsilon/\mathrm{Im}\,\varepsilon$ 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 ($\mathrm{Re}\,\varepsilon = -12.5$, $\mathrm{Im}\,\varepsilon = 20.1$), Pd ($\mathrm{Re}\,\varepsilon = -18.0$, $\mathrm{Im}\,\varepsilon = 19.1$), 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 ($\mathrm{Re}\,\varepsilon = -19.4$, $\mathrm{Im}\,\varepsilon = 1.4$), Ag ($\mathrm{Re}\,\varepsilon = -24.0$, $\mathrm{Im}\,\varepsilon = 1.5$), Cu ($\mathrm{Re}\,\varepsilon = -20.0$, $\mathrm{Im}\,\varepsilon = 2.0$) [24], у 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 $\mathrm{Im}\,\varepsilon$ 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 $\Lambda = 0.65\lambda$–0.75λ, и при модуляции рельефа $h = 0.15\lambda$–0.2λ. 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 $0.2 < F < 0.4$ Дж/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.

---

1. B. Dusser, Z. Sagan, H. Soder, N. Faure, J. P. Colombier, M. Jourlin, and E. Audouard, Opt. Express **18**, 2913 (2010).
2. 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).
3. 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).
4. 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).
5. 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).
7. J. Reif, O. Varlamova, S. Uhlig, S. Varlamov, and M. Bestehorn, Appl. Phys. A **117**, 179 (2014).
8. J. E. Sipe, J. F. Young, J. S. Preston, and H. M. Van Driel, Phys. Rev. B **27**, 1141 (1983).
9. С. А. Ахманов, В. И. Емельянов, Н. И. Коротеев, В. Н. Семиногов, УФН **147**, 675 (1985).
10. В. С. Макин, Ю. И. Пестов, Р. С. Макин, А. Я. Воробьев, Оптич. журнал **76**, 9 (2009).
11. 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).
12. 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).
13. M. Huang, F. Zhao, Y. Cheng, N. Xu, and Z. Xu, Opt. Express **16**(23), 19354 (2008).
14. J. Bonse, A. Rosenfeld, and J. Krüger, J. Appl. Phys. **106**, 104910 (2009).
15. A. Y. Vorobyev, V. S. Makin, and C. Guo, J. Appl. Phys. **101**, 034903 (2007).
16. 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).
17. J. Z. P. Skolski, G. R. B. E. Römer, and J. V. Obona, J. Appl. Phys. **115**, 103102 (2014).
18. M. Huang, F. Zhao, Y. Cheng, N. Xu, and Z. Xu, ACS Nano **3**, 4062 (2009).
19. 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).
20. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, А. Е. Лигачев, С. В. Макаров, Л. В. Селезнев, Д. В. Синицын, Письма в ЖЭТФ **94**, 289 (2011).
21. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, А. Е. Лигачев, С. В. Макаров, Л. В. Селезнев, Д. В. Синицын, Письма в ЖЭТФ **94**, 35 (2011).
22. A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, L. V. Seleznev, and D. V. Sinitsyn, Appl. Phys. A **117**, 1757 (2014).
23. В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов, К. Нишихара, Письма в ЖЭТФ **87**, 491 (2008).
24. E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids*, Academic Press, N.Y. (1998).
25. R. H. M. Groeneveld, R. Sprik, and A. Lagendijk, Phys. Rev. B **51**, 11433 (1995).
26. H. Raether, *Surface Plasmons on Smooth Surfaces*, Springer, Berlin (1988).
27. E. Kröger and E. Kretschmann, Phys. Stat. Sol. **76**, 515 (1976).
28. 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).
29. 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).