

УДК 530.18:535

## Интерференция локализованных поверхностных плазмон-поляритонов и образование нанорешеток рельефа

© 2021 г. **В. С. МАКИН\***, \*\*, ДОКТОР ФИЗ.-МАТ. НАУК; **Р. С. МАКИН\*\*\***, ДОКТОР ФИЗ.-МАТ. НАУК

\*Филиал Корпорации космических систем специального назначения «Комета» —  
Научно-проектный центр оптоэлектронных комплексов наблюдения, Санкт-Петербург

\*\*Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого —  
Институт ядерной энергетики, г. Сосновый Бор Ленинградской обл.

\*\*\*Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Москва

E-mail: vladimir.s.makin@gmail.com

Поступила в редакцию 12.07.2021

DOI:10.17586/1023-5086-2021-88-11-03-08

Выполнен анализ опубликованных экспериментальных работ по изучению двухпучковой фемтосекундной интерференции на поверхностях металлов и диэлектрика, сопровождающейся образованием дополнительных дифракционных наноструктур с существенно субволновыми пространственными периодами. Явление образования дополнительных структур объяснено с привлечением современных понятий о возбуждении пространственных (блоховских) мод локализованных поверхностных плазмон-поляритонов, волн эванесцентного типа, направляемых динамическими выступами (впадинами) интерференционного рельефа. Простота экспериментальной реализации управляемого формирования упорядоченных наноструктур с масштабами, существенно преодолевающими классический дифракционный предел Аббе, позволяет использовать их при создании устройств и приборов с новыми функциональными свойствами, в том числе квантовых.

**Ключевые слова:** оксид цинка, воздействие лазерного излучения, поверхностные плазмон-поляритоны (канальные, клиновые), интерференция, субволновые структуры, универсальная поляритонная модель.

**Коды OCIS:** 140.3990, 190.4350, 240.6680, 050.6624, 320.2250

В физике взаимодействия ультракороткоимпульсного (УКИ) лазерного излучения (ЛИ) с конденсированными средами особый интерес вызывают механизмы самоорганизационного образования мелкомасштабных, с периодом образующейся решетки, много меньшим длины волны воздействующего ЛИ, решеточных структур на поверхностях конденсированных сред [1]. В настоящее время установлено, что образование решеток  $g$  с периодами, кратными длине волны ЛИ, и ориентацией  $g \parallel E$  ( $E$  – тангенциальная проекция вектора напря-

женности электрического поля ЛИ) связано с интерференцией падающего ЛИ с поверхностными плазмон-поляритонами (ППП) и их пространственными гармониками [2]. В текущих публикациях активно обсуждается вопрос о механизмах образования решеточных структур  $G$ , ориентированных  $G \perp E$ , которые ниже будем называть решетками аномальной ориентации, или просто аномальными решетками (аномальные решетки и соответствующие им векторы и периоды в тексте обозначены прописными буквами). Аномальные

решетки, также как решетки нормальной ориентации  $g \parallel E$ , под действием наносекундного и УКИ излучений формируются на материалах с различными физическими свойствами — металлах, полупроводниках и диэлектриках [3–5]. Одна из предложенных моделей образования мелкомасштабных структур основана на выявлении максимумов волновых чисел неустойчивостей тонких слоев расплава на поверхности металла [5], вторая модель связана с образованием полуволнового резонатора на полупрозрачных материалах [6]. Первая модель [5] предсказывает образование решеток только на металлах, не связывает зависимость периодов с длиной волны ЛИ с определенным периодом, а лишь по порядку величины, не предсказывает зависимость ориентации решеток от направления поляризации (линейной) воздействующего ЛИ, что противоречит известным экспериментальным данным. В модели [6] образование нанорешеток аномальной ориентации связывается с формированием в объеме прозрачных сред наноплазменных образований (пузырьков), рассматриваемых в качестве резонаторов минимальных пространственных масштабов  $(\lambda/n)/2$ , где  $\lambda$  — длина волны воздействующего ЛИ,  $n$  — показатель преломления среды. Однако решетки формируются и на металлах.

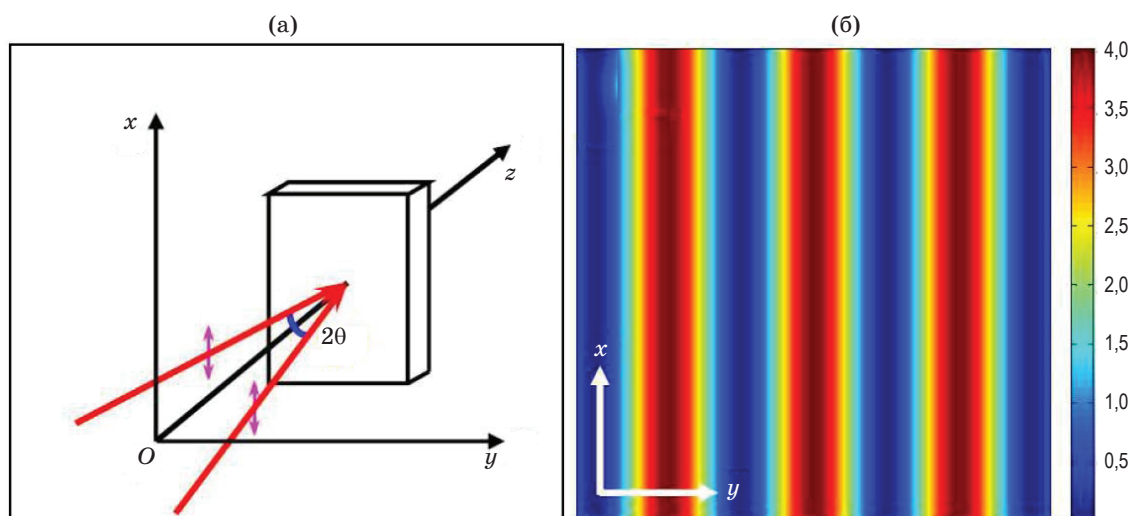
Целью настоящей работы является установление механизма формирования регуляр-

ных наноструктур субволнового пространственного масштаба на поверхностях конденсированных сред под действием двух интерферирующих линейно поляризованных пучков УКИ лазерного излучения.

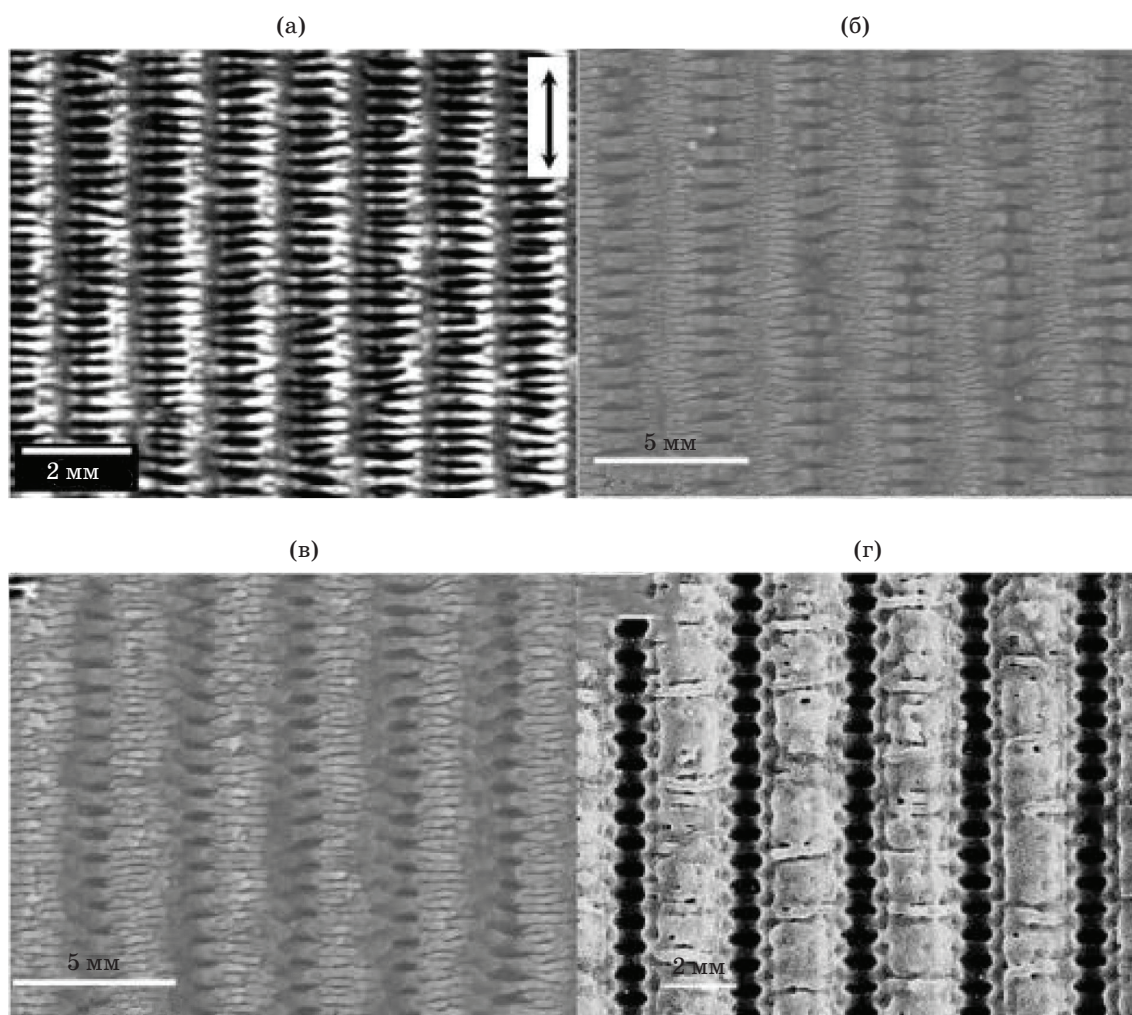
Нами была предложена модель, основанная на интерференции с участием локализованных ППП (канальных, клиновых) [3], справедливая для материалов с различными физическими свойствами.

Согласно нелинейной модели образования пространственных периодов решеток, решетки  $g$  нормальной ориентации ( $g \parallel E$ ) могут иметь периоды, описываемые порядком Шарковского, и наиболее часто универсальностью Фейгенбаума, являющейся частью порядка Шарковского. В данной публикации будут рассматриваться в основном решетки аномальной ориентации.

Проанализируем экспериментальные данные работ [7–9] по воздействию серии импульсов УКИ излучения на пластины кристаллического оксида цинка ZnO, хорошо подтверждающие модель [3]. Воздействие осуществлялось двумя интерферирующими когерентными пучками ( $\lambda = 800$  нм, длительность  $\tau = 50$  фс), что приводило к образованию решетки с периодом  $d_0 = \lambda/\sin\theta$ , где  $2\theta$  — угол между интерферирующими пучками (рис. 1). В эксперименте [8]  $2\theta = 13,9^\circ$ . Однако в его ходе помимо обычных интерференционных структур с периодом  $d_0$  было обнаружено обра-



**Рис. 1.** Иллюстрации геометрии эксперимента по интерференции двух пучков линейно поляризованного в плоскости, перпендикулярной плоскости падения, излучения (а) и образования микрорешетки структур (б).

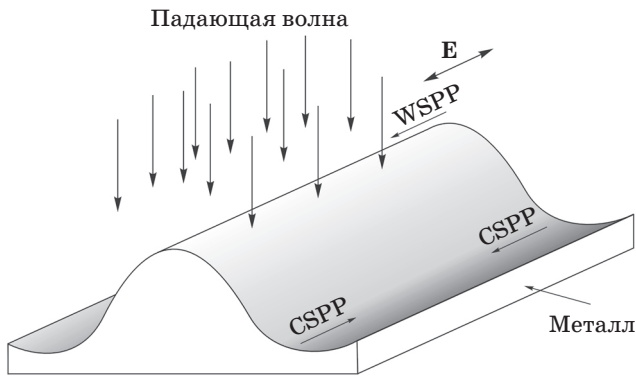


**Рис. 2.** Сканирующие электронно-микроскопические изображения двумерных периодических микроструктур в центральной части областей абляции. Условия лазерного облучения для одного пучка составляли  $Q = 0,1 \text{ Дж/см}^2$ ,  $N = 50$  (а),  $Q = 0,4 \text{ Дж/см}^2$ ,  $N = 10$  (б),  $Q = 0,4 \text{ Дж/см}^2$ ,  $N = 50$  (в),  $Q = 0,4 \text{ Дж/см}^2$ ,  $N = 100$  (г). Двойная стрелка указывает направление поляризации лазерного излучения [8].

зование аномальных решеток ( $G \perp E$ ) (рис. 2), но только в случае, если пучки ЛИ были линейно поляризованы в плоскости, перпендикулярной плоскости падения (каждого из пучков). При ортогональной ориентации поляризаций аномальные решетки отсутствовали. Заметим, что при ортогональной поляризации угол  $2\theta \approx 18^\circ$  является оптимальным для увеличения энерговклада излучения в образец, поскольку он отвечает условию формирования динамической резонансной решетки  $g$  для возбуждения каждым из пучков ППП с противоположными направлениями распространения в направлении вектора  $g$ . В аналогичной схеме эксперимента с интерференцией двух пучков образование решеток аномаль-

ной ориентации наблюдалось на поверхности стали [10]. Экспериментальные данные работ [7–9] остались без объяснений.

Простая геометрия эксперимента [7, 8] (рис. 1) позволяет пояснить наиболее вероятный механизм формирования таких структур в рамках универсальной поляритонной модели (УПМ), связанный с возбуждением ЛИ и участием в интерференции локализованных (канальных и клиновых) ППП (ЛППП) [3], волноведомых цилиндрическими особенностями облучаемой поверхности (рис. 3). Такими особенностями являются выступы и впадины цилиндрического типа основного рельефа поверхности, сформированного в результате интерференции двух пучков ЛИ. Значение



**Рис. 3.** Оптическая схема, иллюстрирующая механизм образования и ориентацию аномальных решеток. Падающее ЛИ возбуждает ЛППП противоположных направлений распространения вдоль протяженного углубления (выступа) основного резонансного рельефа, сформированного при интерференции двух пучков ЛИ. Направление поляризации ЛИ указано двойной стрелкой. Направление образующейся нанорешетки  $G$  параллельно тангенциальной проекции вектора напряженности электрического поля ЛИ  $E$ .

$d_0/2 \approx 1,65$  мкм порядка длины волны ЛИ, так что цилиндрические особенности рельефа не могут поддерживать возбуждение и существование плоской неоднородной волны ППП. Направление вектора электрического поля падающей волны в экспериментальной геометрии параллельно оси цилиндра, что обеспечивает близкую к оптимальной эффективность возбуждения ЛППП. При низких плотностях энергии излучения ( $Q = 0,1$  Дж/см<sup>2</sup>) и количестве импульсов  $N = 50$  (рис. 2а) наблюдалось образование на гребнях основного рельефа решеток  $G$  с периодом  $D = \lambda/2\zeta$ ,  $\zeta \approx 1$  ( $\zeta$  — действительная часть комплексного показателя преломления границы раздела возбужденный кристалл ZnO — воздух для клинового ППП), связанное с взаимной интерференцией клиновых ППП, распространяющихся в противоположных направлениях (вдоль цилиндрического выступа и параллельно  $E$ ). В некоторых пространственных областях зоны воздействия наблюдалось бифуркационное ветвление решетки с уменьшением ее периода в два раза. При увеличении плотности энергии излучения до  $0,4$  Дж/см<sup>2</sup>,  $N = 10$  и  $N = 50$  (рис. 2б, в) решетки образуются как на вершинах основного рельефа, так и в его впадинах, причем видно явное отличие периодов соответствующих решеток.

Интерференция канальных ППП с падающим ЛИ приводит к формированию решеток рельефа  $G_1$  с  $D_1 = \lambda/\zeta \approx 740$  нм,  $\zeta \approx 1,08$  (рис. 2б, в), а взаимная интерференция клиновых ППП противоположных направлений распространения — к  $G_2$  с  $D_2 = \lambda/2\zeta = 350$  нм,  $\zeta \approx 1,15$ , причем  $G_1, G_2 \parallel E$ . При  $Q = 0,4$  Дж/см<sup>2</sup> и воздействии 100 импульсов решетки, связанная с взаимной интерференцией клиновых ППП почти полностью сглаживается (вероятно, в результате полного плавления гребней основного рельефа за счет роста коэффициента преобразования излучения в тепло на решетке с возросшей амплитудой), при этом во впадинах рельефа решетка преобразуется в периодические эллиптические отверстия с ориентацией большой полуоси эллипса перпендикулярно образующей цилиндра (протяженного выступа) (рис. 2г). Период этих структур  $D = \lambda/\zeta \approx 690$  нм,  $\zeta \approx 1,15$ . Значение  $\zeta \approx 1,15$  оказывается выше по сравнению с  $\zeta \approx 1,08$  для решетки, из которой она эволюционировала, что связано с изменением дисперсионного соотношения для канальных ППП на решетке увеличенной глубины [11].

Минимальное экспериментальное значение периодов аномальных решеток составило  $D_{\min} = \lambda/2\zeta \approx 350$  нм, что меньше  $\lambda/2 = 400$  нм, т.е. преодолевается критерий Аббе. В этом нет никакого противоречия, поскольку рассматривались нелинейные процессы, а критерий Аббе был сформулирован для линейного случая. Отметим, что в работе [12] были получены существенно меньшие значения периодов решеток нормальной ориентации на ZnO (порядка  $0,1\lambda$ ).

Выражения для периодов решеточных структур нормальной ориентации записаны нами при условии интерференции ППП, возбуждаемых на границе раздела возбужденный ZnO — воздух. Поскольку материал прозрачен на  $\lambda = 800$  нм, возможно возбуждение ППП на границе раздела возбужденный ZnO—ZnO; при этом в знаменатель выражения для периода  $d$  войдет показатель преломления среды (см. также [11, 13]).

В работе [3] описана модель стандартного (реализующаяся в обычных экспериментах) образования аномальных решеток при иерархическом образовании сначала решеток  $g$  и далее на ее выступах (впадинах) формирова-

ния решеток  $\mathbf{G}$ , обусловленных интерференцией с участием клиновых (канальных) ППП. В публикации [9] близкая по последовательности формирования иерархических структур модель (без указания на природу интерферирующих волн) была описана для кристаллического ZnO. Однако, по нашему мнению, авторы неверно указали направление поляризации ЛИ. В завершающем эксперименте, подтверждающем модель, авторы [9] формируют решетку  $\mathbf{g} \parallel \mathbf{E}$  на поверхности подложки из SiO<sub>2</sub>, наносят пленку ZnO, поворачивают вектор  $\mathbf{E}$  на угол  $\pi/2$  и формируют решетки  $\mathbf{G} \parallel \mathbf{E}$  на выступах решетки  $\mathbf{g}$ . Такая геометрия обеспечивает оптимальные условия для возбуждения клиновых ППП (вектор поляризации  $\mathbf{E}$  параллелен образующей выступа решетки рельефа). Минимальный период аномальной решетки  $\mathbf{G}$  составил  $D = \lambda/\zeta \approx 90$  нм, что много меньше длины волны ЛИ ( $\lambda = 800$  нм,  $\tau = 50$  фс,  $Q = 0,1$  Дж/см<sup>2</sup>,  $N = 100$ ).

В работе [10] в результате воздействия интерференционной решеткой двух пучков УКИ излучения ( $\lambda = 790$  нм,  $\tau = 100$  фс,  $Q = 50$  мДж/см<sup>2</sup>, частота импульсов 10 Гц) и  $N = 150$  на поверхностях стали и титана формировались интерференционные картины при несимметричном падении пучков: один направлялся по нормали, а другой — под углом 64°. Излучение было линейно поляризовано в плоскости падения (горизонтально). И в этом случае было обнаружено образование аномальных решеток  $\mathbf{G} \perp \mathbf{g}$ . Это объясняется тем, что возникновение вертикальной компоненты вектора  $\mathbf{E}$  связано с падением излучения на уже гофрированную решеткой  $\mathbf{g}$  поверхность. На поверхности стали формировались решетки  $\mathbf{G}$  хорошего качества, обусловленные взаимной интерференцией канальных ППП, с периодом  $D = \lambda/8\zeta \approx 93$  нм,  $\zeta \approx 1,06$ . На поверхности титана наблюдались аномальные решетки  $\mathbf{G}$  с периодом  $D = \lambda/8\zeta \approx 87$  нм,  $\zeta \approx 1,13$ . Заметим, что ориентация поляризации излучений в плоскости их падения приводила к образованию дополнительных к интерференционной решеток нормальной ориентации.

Таким образом, в настоящей работе показано, что образование наномасштабных периодических структур на гребнях и впадинах интерференционного рельефа обусловлено возбуждением и взаимной интерференцией

эванесцентных мод: ЛППП, канальных и клиновых, и их пространственных гармоник, направляемых впадинами и выступами интерференционного рельефа соответственно. Периоды образующегося рельефа прямо пропорциональны длине волны лазерного излучения, что обеспечивает возможность управления параметрами наноструктур. Периоды структур, сформированных при интерференции канальных ППП, существенно отличаются от таковых для клиновых ППП, что служит одним из подтверждений предложенной модели.

Важным подтверждением справедливости модели является наличие наноструктур при действии линейно поляризованных интерферирующих пучков, поляризованных в плоскости падения ( $\mathbf{E} \perp \mathbf{g}$ ) и их отсутствие при ортогональной поляризации. Универсальная поляритонная модель лазерно-индуцированного самоупорядоченного формирования пространственных решеточных структур непротиворечиво объясняет иерархическое образование решеток аномальной ориентации, подробно проиллюстрированное на примере диэлектрика ZnO. Рассматриваемый эффект имеет достаточно общий характер, поскольку наблюдается на материалах с существенно различными физическими свойствами — металлах и диэлектриках, в условиях создания выше критических концентраций неравновесных носителей для обеспечения динамических поверхностно-активных свойств диэлектрика. Справедливость подхода, предложенного для диэлектриков, для металлов продемонстрирована на примере титана и нержавеющей стали. Авторы полагают, что рассмотренный эффект может наблюдаться также на полупроводниках.

Регулируя плотность энергии пучков, можно управлять пространственным положением нанорельефа (например, его наличие в пучностях и отсутствие во впадинах интерференционного рельефа). Дополнительная степень регулировки возникает при управлении поляризацией излучений.

Существенно субволновый масштаб формируемых решеток аномальной ориентации, преодолевающий известный (линейный) дифракционный оптический предел Аббе, обусловлен нелинейностью физических процессов, вовлекаемых в его формирование. Именно

с использованием эванесцентных мод обычно связывают преодоление дифракционного оптического предела.

Научная новизна работы заключается в использовании для интерпретации явления, наблюдавшегося на материалах с существенно различными физическими свойствами, локализованных ППП, возбуждаемых на динамических регулярных модуляциях рельефа субволнового пространственного масштаба. В результате на основе ряда экспериментальных данных, используя нелинейную математическую модель формирования пространственных периодов структур и УПМ, теоретически показано, что образование наноструктур связано с возбуждением ЛППП и взаимной интерференцией их пространственных мод.

Понимание механизма образования субволновых решеток аномальной ориентации и достаточно простые геометрия и управление (процессом их формирования на поверхностях материалов) позволяют использовать их для ряда функциональных применений с использованием обычного лазерного излучения при разработке устройств и приборов, в том числе квантовых, включая просветление оптических поверхностей, ориентацию биологических объектов, ориентацию мицелл жидких кристаллов для создания дисплеев сверхвысокой четкости, пространственное управление поглощательной и эмиссионной способностями оптических поверхностей, изменения трибологических свойств и свойств смачивания поверхностей материалов и др.

## ЛИТЕРАТУРА

1. *Bonse J., Holm S., Kirner S., Rosenfeld A., Kruger J.* Laser-induced periodic surface structures (LIPSS) — a scientific evergreen // *IEEE J. Selected Topics in Quantum Electronics*. 2017. V. 23. № 3. Article 9000651.
2. *Макин В.С., Макин Р.С., Воробьев А.Я.* Универсальность Фейгенбаума и порядок Шарковского в лазерно-индуцированных периодических структурах на поверхностях и в объеме конденсированных сред / в сб. *Нелинейность в современном естествознании*, под ред. Малинецкого Г.Г. М.: изд. ЛКИ, 2009. С. 303–322.
3. *Макин В.С., Логачева Е.И., Макин Р.С.* Локализованные поверхностные плазмон поляритоны и нелинейное преодоление дифракционного оптического предела // *Опт. спектр*. 2016. Т. 118. № 4. С. 118–123.
4. *Makin V.S., Pestov Yu.I., Makin R.S.* Abnormal spatial nanogratings formation by long pulse laser radiation on condensed matter surfaces // *Proc. Internat. Conf. "Days on Diffraction"*. 2016. P. 298–303.
5. *Kirichenko N.A., Barmina E.V., Shafeev G.A.* Theoretical and experimental investigation of the formation of high spatial frequency periodic structures on metal surfaces irradiated by ultrashort laser pulses // *Physics of Wave Phenomena*. 2018. V. 26. № 4. P. 264–273.
6. *Buividas R., Rosa L., Slipas R., Kurdis T., Slekis G., Datsyk V.V., Juodkazis S.* Mechanism of fine ripple formation on surfaces of (semi)transparent materials via half-wavelength cavity feedback // *Nanotechnol.* 2010. V. 22. № 5. P. 5504.
7. *Jia T.Q., Baba M., Suzuki M., Ganeev R.A., Kuroda H., Qiu J.R., Wang X., Li R., Xu Z.* Fabrication of two-dimensional periodic nanostructures by two-beam interference of femtosecond pulses // *Opt. Exp.* 2008. V. 16. № 3. P. 1874–1878.
8. *Jia X., Jia T., Zhang Y., Xoing P., Feng D., Sun Z., Xu Z.* Optical absorption of two dimensional periodic microstructures on ZnO crystal fabricated by the interference of two femtosecond laser beams // *Opt. Exp.* 2010. V. 18. № 14. P. 14401.
9. *Wang S., Jiang L., Han W., Hu J., Wang Q., Lu Y.* Hierarchical laser induced periodic surface structures induced by femtosecond laser on the surface of a ZnO film // *Appl. Phys. Exp.* 2018. V. 11. P. 052703.
10. *Miyazaki K., Miyaji G., Inoue T.* Nanograting formation on metals in air with interfering femtosecond laser pulses // *Appl. Phys. Lett.* 2015. V. 107. P. 071103.
11. *Поверхностные поляритоны* / под ред. Аграновича В.М., Марадудина А.А. М.: Наука, 1985. 526 с.
12. *Макин В.С., Макин Р.С.* Нелинейное взаимодействие линейно поляризованного лазерного излучения с конденсированными средами и преодоление дифракционного предела // *Опт. спектр*. 2012. Т. 112. № 2. С. 193–198.
13. *Abdelmalek A., Bedrane Z., Bharadwaj V., Amara E.-H., Ramponi R., Eaton S.M.* Generalized plasmonic modeling of the effect of refractive index on laser-induced periodic nanostructures // *J. Materials and Applications*. 2019. V. 8. № 2. P. 73–79.