

**ВОЗДЕЙСТВИЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВЕЩЕСТВО**

PACS 81.07.-b; 81.16.-c; 42.65.Re

**Формирование квазипериодических нано- и микроструктур на поверхности кремния под действием ИК и УФ фемтосекундных лазерных импульсов****А.А.Ионин, С.И.Кудряшов, С.В.Макаров, Л.В.Селезнев, Д.В.Синицын, Е.В.Голосов, О.А.Голосова, Ю.Р.Колобов, А.Е.Лигачев**

*С помощью ИК ( $\lambda \approx 744$  нм) и УФ ( $\lambda \approx 248$  нм) фемтосекундных лазерных импульсов получены квазипериодические нано- и микроструктуры на поверхности кремния. Исследована зависимость топологии структурированной поверхности от плотности энергии падающего излучения и числа импульсов. Определены пороги наноструктурирования кремния для указанных длин волн. Обнаружено явление возникновения модуляции рельефа поверхности на удвоенной пространственной частоте и предложено его качественное объяснение. Проведены сравнительный анализ и обсуждение периодов наноструктур, полученных на поверхности кремния под действием ИК и УФ фемтосекундных лазерных импульсов.*

**Ключевые слова:** ИК и УФ фемтосекундные лазерные импульсы, кремний, поверхностные квазипериодические нано- и микроструктуры.

**1. Введение**

Возникновение лазерно-индуцированных периодических структур на поверхностях разных материалов при различных условиях лазерного облучения исследуется уже более 30 лет. Детально изучено возникновение (формирование или, иначе, запись) поверхностных структур в режиме облучения поверхности лазерными импульсами с длительностью порядка сотен и более пикосекунд [1–3]. После такого воздействия при интенсивности излучения вблизи порога плавления на поверхностях полупроводников и металлов образуются решетки с периодом, близким к длине волны (при нормальном падении лазерного излучения), а также разнопериодные структуры, связанные с возникновением различных неустойчивостей и капиллярных волн [4, 5]. При интенсивностях, превышающих порог абляции материала, на поверхности наблюдают формирование квазипериодических микроконусов [6, 7].

В последнее десятилетие появилось большое количество экспериментальных работ, демонстрирующих эффект уменьшения периода поверхностных решеток от субволнового вплоть до субнанометрового масштаба при использовании ультракоротких лазерных импульсов (УКИ) фемтосекундной длительности ИК диапазона [8–13]. Одна из причин такого отличия от режима суб- и наносекундного лазерного воздействия заключается в существенном изменении оптических свойств поверхности во время ее взаимодействия с одиночным УКИ, т. к. температура электронной подсистемы в приповерхностном слое может суще-

ственно превосходить температуру кристаллической решетки [14], а в случае полупроводников происходит интенсивная генерация плотной электронно-дырочной плазмы ( $N \approx 10^{21} - 10^{22}$  см<sup>-3</sup>) [15, 16]. Другое, не менее важное отличие режима воздействия УКИ состоит в том, что процесс записи поверхностного рельефа происходит значительно позже акта поглощения УКИ поверхностью [14].

Формирование на поверхности кремния решеток с периодами меньше длины волны при использовании УКИ ближнего ИК диапазона в различных средах изучено в работах [7, 17–32]. Однако исследования по записи периодических структур на поверхности кремния при помощи УКИ УФ диапазона до сих пор не проводились, за исключением двух единственных работ [33, 34], где были получены разупорядоченные и упорядоченные микроструктуры с характерными размерами много больше длины волны. Все работы по структурированию поверхности кремния излучением УФ диапазона выполнялись с использованием наносекундных импульсов эксимерных лазеров [35, 36].

В настоящей работе, наряду с часто используемыми УКИ ИК диапазона, применялись также УКИ с примерно в три раза меньшей длиной волны, что потенциально представляет интерес с точки зрения возможности существенного уменьшения периода возникающих периодических поверхностных наноструктур при более низких порогах наноструктурирования и дозах лазерного облучения. Как следует из полученных нами результатов, наноструктурирование кремния при облучении УФ УКИ действительно происходит при меньших плотностях энергии, и одновременно наблюдается соответствующее – примерно трехкратное – уменьшение периода наноструктур.

**2. Экспериментальная часть**

В экспериментах использовалось линейно поляризованное излучение основной гармоники (центральная длина волны  $\lambda \approx 744$  нм, ширина полосы генерации на высоте 12 нм) и третьей гармоники (центральная длина волны  $\lambda \approx 248$  нм, ширина полосы генерации на высоте 1.3 нм) фемтосекундной Ti:сапфировой лазерной

А.А.Ионин, С.И.Кудряшов, С.В.Макаров, Л.В.Селезнев, Д.В.Синицын. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: sikudr@sci.lebedev.ru, makarov\_sergey\_vl@mail.ru

Е.В.Голосов, О.А.Голосова, Ю.Р.Колобов. Белгородский государственный университет, 308015 Белгород, ул. Победы, 85

А.Е.Лигачев. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38

Поступила в редакцию 30 декабря 2010 г., после доработки – 29 июня 2011 г.

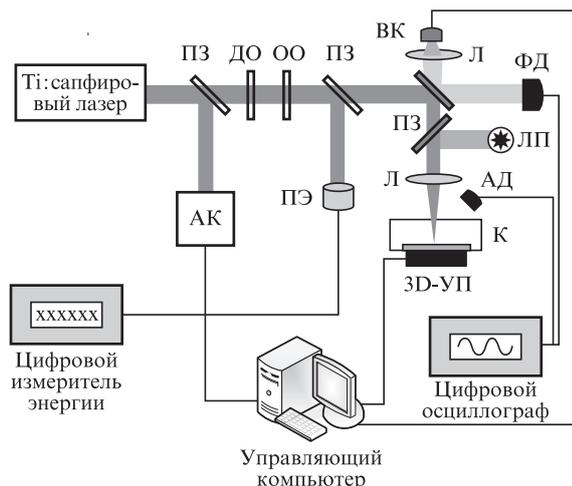


Рис.1. Экспериментальная установка для фемтосекундного лазерного нано- и микроstructuring поверхностей: ПЗ – полупрозрачное зеркало; ДО, ОО – дифракционный и отражательный ослабители; АК – автокоррелятор; ФД – фотодиод; ИЭ – термоэлектрический измеритель энергии; Л – кварцевая линза; ВК – видеокамера; ЛП – лампа подсветки; К – стеклянная кювета с образцом; 3D-УП – управляемая трехмерная моторизованная микроподвижка; АД – акустический датчик.

установки (рис.1). Длительность ИК и УФ импульсов составляла около 100 фс (в области взаимодействия), энергия – до 8 и до 0.5 мДж соответственно, частота следования равнялась 10 Гц, поперечное пространственное распределение лазерного поля соответствовало моде  $TEM_{00}$ . Энергия лазерных импульсов регулировалась с помощью отражательных поляризационных ослабителей соответствующего спектрального диапазона (Авеста Проект) и контролировалась калиброванным фотодиодом DET-210 (Thorlab), засвечиваемым слабым лазерным бликом через поворотное диэлектрическое зеркало. Энергия лазерного излучения выбиралась так, чтобы избежать заметной деградации распределения плотности энергии на поверхности мишени, связанной с самофокусировкой в воздухе и сопутствующими ей эффектами хроматической эмиссии, филаментации и рассеяния на воздушной плазме [37].

Запись микро- и наноструктурированных участков в виде отдельных точек осуществлялась путем фокусировки ИК и УФ лазерного излучения в пятно диаметром соответственно 450 и 370 мкм по уровню интенсивности  $1/e$  при нормальном падении на оптически гладкую поверхность стационарной кремневой мишени Si(100). Полученные с помощью сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) Quanta FEG 600 изображения поверхности в дальнейшем исследовались с использованием процедуры быстрого фурье-преобразования.

### 3. Нано- и микроstructuring поверхности кремния под действием ИК УКИ

На рис.2 представлены три основных стадии преобразования рельефа поверхности: одномерная субволновая решетка (нанорешетка); изотропные микроstructures, частично покрывающие одномерную субволновую решетку; изотропная микроstructure. Переход от одной стадии к последующей происходит с увеличением числа лазерных импульсов  $N$ , падающих на образец, при неизменной плотности энергии  $F$ .

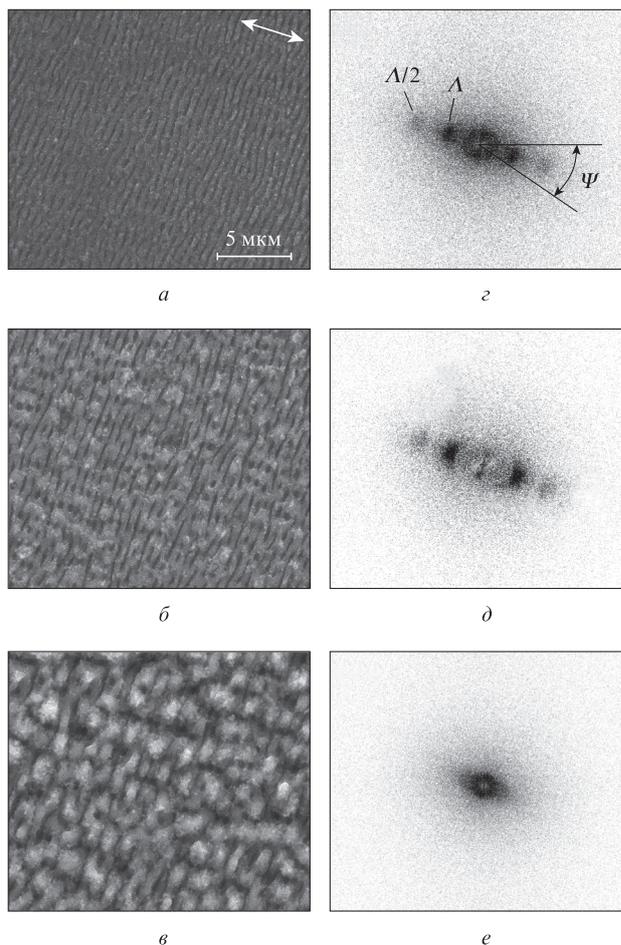


Рис.2. Эволюция поверхностной лазерно-индуцированной субволновой нанорешетки (а) в микроstructure (б) при увеличении числа упавших на поверхность кремния импульсов  $N$ , равных 100 (а), 300 (б) и 1000 (в), при постоянной плотности энергии  $F \approx 0.31$  Дж/см<sup>2</sup>. Стрелка на рис.2,а указывает ориентацию вектора поляризации лазерного излучения. Двумерные пространственные фурье-спектры, соответствующие снимкам (а–в), даны на рисунках (г–е). На рис.2,г символ  $\Psi$  обозначает угловую ширину распределения волновых векторов поверхностной нанорешетки с периодом  $\Lambda \approx 550$  нм.

В случае относительно небольших плотностей энергии ИК УКИ ( $F \approx 0.31$  Дж/см<sup>2</sup>) при числе импульсов  $N \approx 100$  наблюдается образование периодических и квазипериодических одномерных решеток со средним периодом  $\Lambda \approx 550$  нм и средней толщиной выступов (гребней)  $\Delta \approx 290$  нм (рис.2,а). На рис.2,б отчетливо видно, как на уже сформированной одномерной нанорешетке образуются скопления аблированного материала. Соответствующие пространственные фурье-спектры поверхностей также наглядно иллюстрируют переход от квазипериодической одномерной поверхностной нанорешетки к двумерной микроstructure, т.е. переход от картины с узкими высокочастотными максимумами (рис.2,г) к спектру с низкочастотным кольцом (рис.2,е). Период одномерной нанорешетки в среднем несколько увеличивается при увеличении числа импульсов: от  $\Lambda \approx 550$  нм ( $N \approx 100$ ) до  $\Lambda \approx 560$  нм ( $N \approx 300$ ).

На рис.3 представлены снимки участков поверхности кремния, наноструктурированных при одинаковом числе ИК УКИ  $N \approx 300$ , но при различных плотностях энергии  $F$  ( $F \approx 0.25$ – $0.5$  Дж/см<sup>2</sup>). Как и в случае увеличения числа импульсов при постоянной  $F$ , здесь имеет место переход от одномерной периодической структуры к двумерной

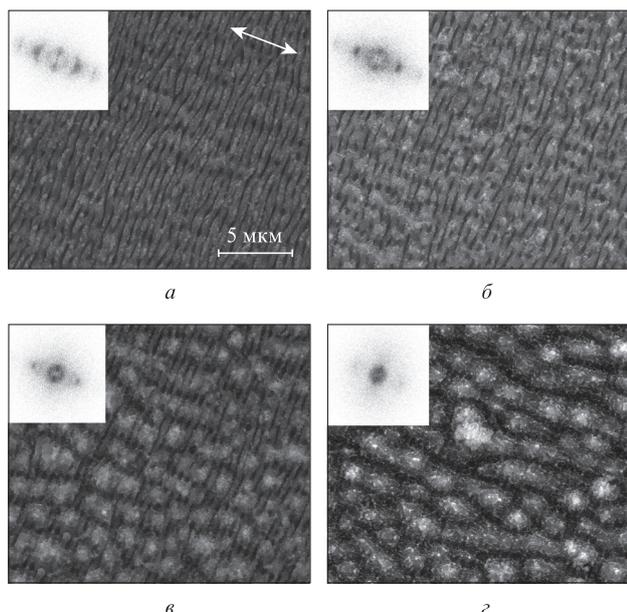


Рис.3. Эволюция поверхностной структуры с увеличением плотности энергии:  $F \approx 0.25$  (а),  $0.31$  (б),  $0.37$  (в) и  $0.5$  Дж/см<sup>2</sup> (з) при  $N \approx 300$ . Стрелкой указана ориентация поляризации лазерного излучения. На вставках показаны фурье-спектры соответствующих изображений поверхности.

разупорядоченной, а также наблюдаются промежуточные стадии, когда фурье-спектр поверхности содержит и узкие максимумы, соответствующие одномерным нанорешеткам, и низкочастотное кольцо, соответствующее изотропной поверхностной структуре из микропикчиков (рис.3,б и в). На вставках к рис.3,а–в можно видеть преобразование низкочастотного кольца – от слабовыраженного с двумя максимумами, которые соответствуют поперечной решетке с периодом, превышающим примерно в 2.5 раза длину волны лазерного излучения, в сильновыраженное кольцо.

Таким образом, как увеличение числа импульсов, так и повышение плотности энергии ИК УКИ приводит к огрублению поверхностного рельефа. Очевидно, что в данном случае имеет место так называемый кумулятивный эффект, когда с ростом числа импульсов снижается пороговая плотность энергии для образования того или иного типа структур и, наоборот, с ростом плотности энергии требуется меньшее число импульсов для протекания тех же процессов.

Для определения пороговой плотности энергии ИК УКИ для образования одномерных субволновых решеток как функции числа импульсов  $N$  использовалась следующая аппроксимация [38]:

$$F_{IR(UV)}^{nano}(N) = F_{IR(UV)}^{nano}(1)N^{-\alpha}, \quad (1)$$

где  $F_{IR(UV)}^{nano}(1)$  – пороговая плотность энергии для одноимпульсного воздействия ИК (УФ) УКИ;  $\alpha$  – параметр кумулятивности, различный для разных материалов. На рис.4 представлена аппроксимация экспериментальных значений  $F_{IR(UV)}^{nano}(N)$  формулой (1), которая дает параметры  $F_{IR}^{nano}(1) \approx 0.24$  Дж/см<sup>2</sup> и  $\alpha \approx 0.14$ , близкие к измеренным ранее при значениях  $N$  от 1 до 100 [39]. Значения кумулятивных параметров для образования на поверхности кремния изотропных микроструктур таковы:  $F_{IR}^{micro}(1) \approx 0.56$  Дж/см<sup>2</sup> и  $\alpha \approx 0.14$ .

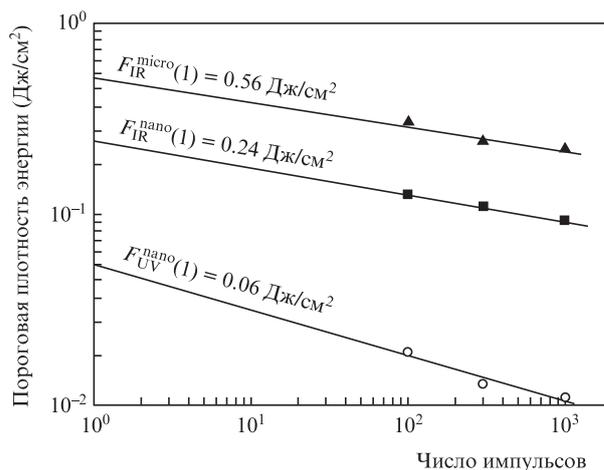


Рис.4. Зависимость пороговой плотности энергии лазерных импульсов для формирования поверхностных одномерных нанорешеток в ИК диапазоне ( $F_{IR}^{nano}(N)$ ), УФ диапазоне ( $F_{UV}^{nano}(N)$ ), а также формирования поверхностной микроструктуры ИК УКИ ( $F_{IR}^{micro}(N)$ ) от числа лазерных импульсов  $N$  (▲ и ■ – измерения в ИК диапазоне, ○ – в УФ диапазоне; сплошные линии – аппроксимация по формуле (1)).

При сравнении пространственных фурье-спектров разных наноструктурированных участков поверхности кремния оказалось, что, как правило, ширина углового распределения обратных векторов одномерной нанорешетки с увеличением числа импульсов становится меньше (рис.5); это говорит о постепенном выделении преимущественного направления волнового вектора решетки. Кроме того, такая зависимость указывает на возможность повышения качества одномерной нанорешетки. Также установлено, что ширина гребней одномерной нанорешетки уменьшается с ростом плотности энергии ИК УКИ для  $N \approx 100$  при слабо меняющемся периоде (рис.5) и коррелирует с увеличением количества продуктов абляции на поверхности.

В определенном диапазоне внешних параметров ИК УКИ наблюдалось удвоение пространственной частоты поверхностного рельефа ( $\lambda/2 \approx 290$  нм), что видно на рис.2,з, д и 3,а. Примечательно, что при  $F \approx 0.25$  Дж/см<sup>2</sup> и  $N \approx 300$  удвоенная пространственная частота действительно присутствует в профиле периодического рельефа поверхности (рис.6,а), в его одномерном (рис.6,б) и дву-

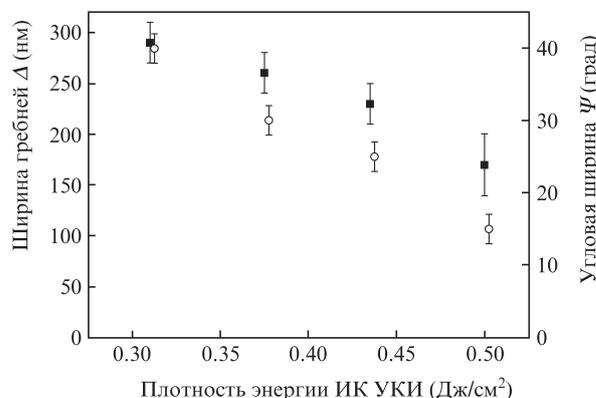


Рис.5. Зависимости угловой ширины  $\Psi$  распределения волновых векторов одномерной квазипериодической субволновой нанорешетки (○, правая ось) и пространственной ширины гребня решетки  $\Delta$  (■, левая ось) от плотности энергии ИК УКИ при  $N \approx 100$ .

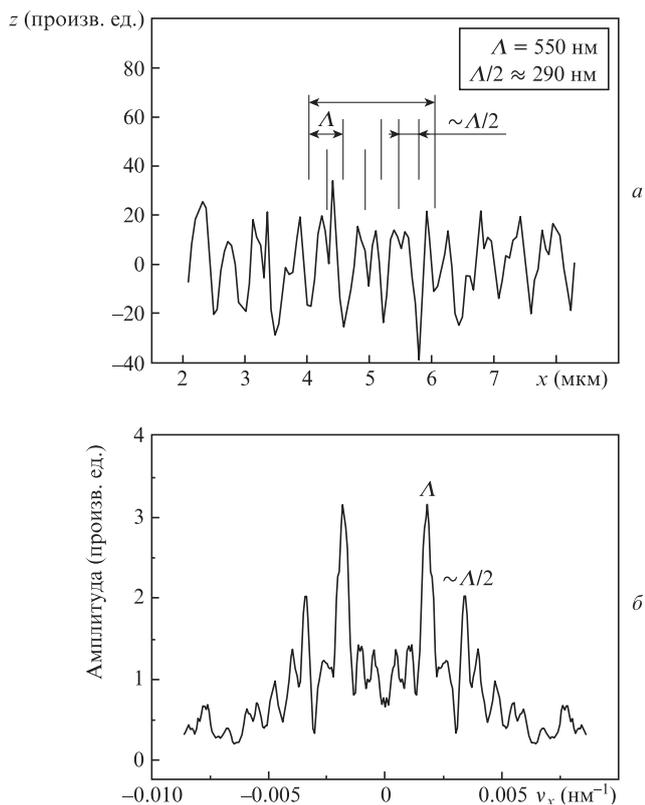


Рис.6. Одномерный профиль рельефа поверхности (а) и его фурье-спектр (б) при  $F \approx 0.25$  Дж/см<sup>2</sup> и  $N \approx 300$ . Двумерное изображение рельефа и его фурье-спектр, соответствующие этому рисунку, даны на рис.3,а.

мерном фурье-спектрах (рис.2 и 3) вследствие реальной записи периодической структуры с периодом вдвое меньшим, чем период основной решетки (см. рис.6,а), и не проявляется в фурье-спектрах из-за несинусоидальности профиля нанорешетки с основным периодом около 550 нм. Характерно, что при фиксированной плотности энергии  $F$  выше  $F_{\text{IR}}^{\text{nano}}(1)$ , например при  $F \leq 0.31$  Дж/см<sup>2</sup>, вторая гармоника поверхностного рельефа возникла в определенном диапазоне числа импульсов  $100 \leq N \leq 300$  и затем, как и наблюдалось ранее [40], исчезала с ростом  $N$ . Аналогично, вторая гармоника при  $N = 300$  появлялась в диапазоне  $F_{\text{IR}}^{\text{nano}}(1) \leq F = 0.25-0.31$  Дж/см<sup>2</sup>. Нами впервые установлено, что структура рельефа со второй гармоникой исчезает под слоем перепыленных на поверхность продуктов абляции, что видно из серий рис.2 и 3.

#### 4. Нано- и микроструктурирование поверхности кремния под действием УФ УКИ

При воздействии на поверхность кремния УФ УКИ обнаружены нанорешетки трех типов: низкочастотные – с периодом значительно больше длины волны ( $\Lambda_L > \lambda$ ), высокочастотные – с периодом несколько меньше длины волны ( $\Lambda_H < \lambda$ ), а также содержащие вторую пространственную гармонику относительно высокочастотной нанорешетки ( $\Lambda_{\text{SH}} = 2\Lambda_H$ ).

Изменения нанорешеток первого типа при различном числе УФ УКИ и различной плотности энергии изображены на рис.7. Эволюция рельефа при увеличении  $N$  аналогична той, что была в рассмотренном выше случае нано-

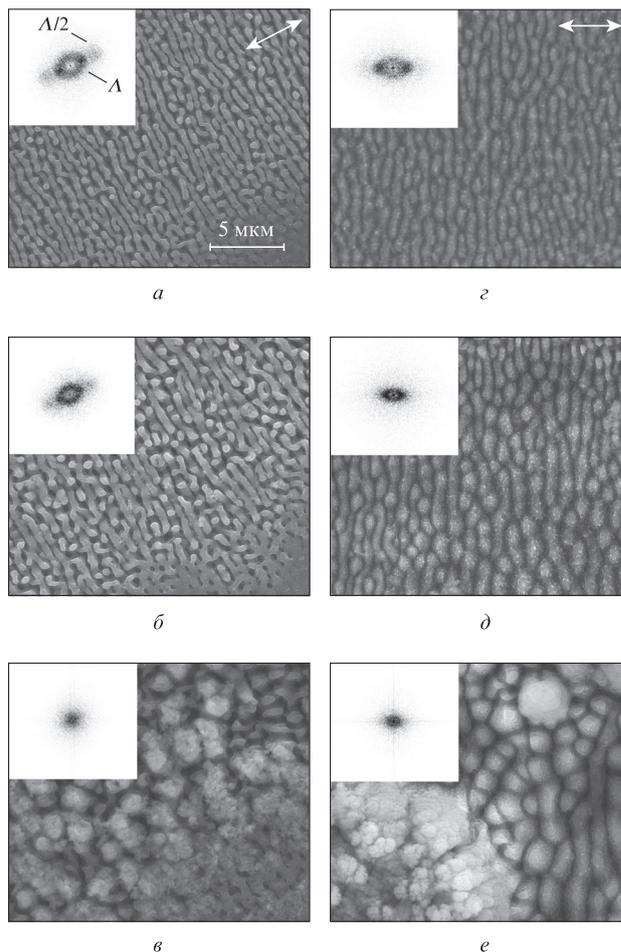


Рис.7. СЭМ-снимки поверхности кремния после облучения УФ УКИ при  $F \approx 0.09$  Дж/см<sup>2</sup> для  $N \approx 100$  (а), 300 (б) и 1000 импульсов (в), а также при  $F \approx 0.18$  Дж/см<sup>2</sup> для  $N \approx 100$  (г), 300 (д) и 1000 импульсов (е). Стрелкой на рис.7,а указана ориентация лазерной поляризации для верхнего ряда рисунков, а на рис.7,г – для нижнего.

и микроструктурирования ИК УКИ. При увеличении  $N$  период одномерной нанорешетки несколько увеличивается:  $\Lambda_L \approx 540$  нм ( $N \approx 100$ ) и  $\Lambda_L \approx 600$  нм ( $N \approx 300$ ) (рис.7,а, б), а затем при  $N \approx 1000$  она деградирует в разупорядоченную двумерную микроструктуру (рис.7,в). Однако с ростом плотности энергии лазерных импульсов одномерная упорядоченность структуры почти сохраняется, зато существенно меняется сам период нанорешетки (рис.7,г) – от  $\Lambda_L \approx 540$  нм при  $F \approx 0.09$  Дж/см<sup>2</sup> и  $N \approx 100$  до всего спектра значений  $\Lambda_L$  (от 300 нм до 1 мкм) при  $F \approx 0.18$  Дж/см<sup>2</sup> и  $N \approx 100$ . Кумулятивные параметры для возникновения одномерных периодических решеток при облучении УФ УКИ:  $F_{\text{UV}}^{\text{nano}}(1) \approx 0.06$  Дж/см<sup>2</sup> и  $\alpha \approx 0.24$  (рис.4).

При воздействии на поверхность кремния УФ УКИ с пиковой плотностью энергии  $F \approx 0.8-10$  Дж/см<sup>2</sup> в центре пятна наблюдается формирование разупорядоченных микроструктур. По мере удаления от центра области воздействия наблюдаются различные типы периодических структур. Как показано на рис.8, в области, где локальное значение плотности энергии  $F \approx 0.2$  Дж/см<sup>2</sup>, возможна одновременная запись нанорешеток с различным периодом, но с одинаковой ориентацией: период низкочастотной нанорешетки, как и в представленном выше случае, варьируется в пределах  $\Lambda_L \approx 550-650$  нм, а высокочастотная нанорешетка имеет период  $\Lambda_H \approx 200$  нм. При дальнейшем удалении от центра воздействия лазерного пучка на-

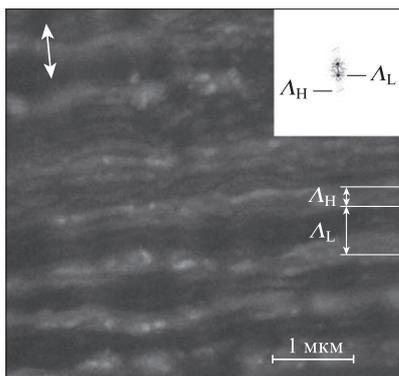


Рис.8. СЭМ-снимок участка поверхности кремния, облученного УФ УКИ при  $F \approx 0.2$  Дж/см<sup>2</sup> и  $N \sim 10$ , и соответствующий фурье-спектр (вставка). Стрелка показывает направление поляризации лазерного излучения.

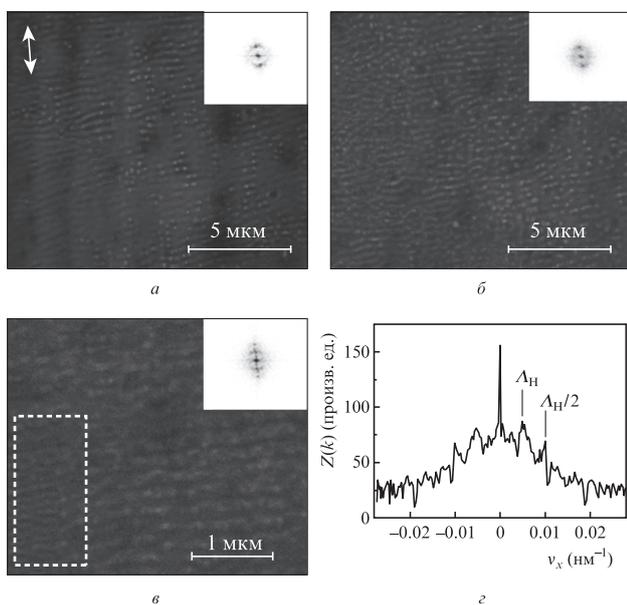


Рис.9. СЭМ-снимки поверхности кремния после воздействия УФ УКИ при  $F \approx 3$  (а), 0.8 (б) и 1 Дж/см<sup>2</sup> (в) для  $N \sim 10$  с соответствующими двумерными фурье-спектрами на вставках и сечением (г) фурье-спектра на вставке рис.9,в. Стрелка на рис.9,а показывает направление поляризации лазерного излучения; пунктирная линия на рис.9,в выделяет область, где отчетливо видно удвоение пространственной частоты.

блюдаются только высокочастотные нанорешетки с периодом  $\Lambda_H \approx 200$  нм и с ориентацией штрихов, перпендикулярной поляризации лазерного излучения (рис.9). Как видно из рис.9,в,г, в некоторых областях отчетливо наблюдается уменьшение периода мелкомасштабных нанорешеток в два раза, связанное с генерацией второй пространственной гармоники высокочастотной компоненты поверхностного рельефа с  $\Lambda_{SH} = 2\Lambda_H$ .

### 5. Обсуждение

Топологический переход поверхностного рельефа при изменении внешних параметров излучения – от одномерных упорядоченных решеток к изотропным микроструктурам – качественно один и тот же для режимов воздействия ИК и УФ УКИ, это видно из сравнения рис.2, 3 и 7. Ориентация гребней у возникающих одномерных поверхностных субволновых нанорешеток перпендикулярна век-

тору поляризации лазерного поля ИК и УФ УКИ, что говорит об интерференционном механизме формирования таких структур [1–3].

Полученный порог возникновения периодических одномерных нанорешеток на поверхности кремния для одиночного УКИ ближнего ИК диапазона ( $F_{IR}^{nano}(1) \approx 0.24$  Дж/см<sup>2</sup>) несколько ниже порога плавления материала ( $F_{IR}^{melt}(1) \approx 0.3$  Дж/см<sup>2</sup>) [41]. Это означает, что процесс равномерного оплавления поверхности не играет важной роли для формирования упорядоченного субволнового рельефа. Основной вклад в образование периодических структур на поверхности кремния в воздухе вносит процесс абляции в максимумах интерференции падающей волны с возбуждаемой ею поверхностной электромагнитной волной. Это подтверждает анализ снимков СЭМ всех структурированных поверхностей, полученных при облучении кремния ИК УКИ, т.е. везде одномерные нанорешетки покрыты продуктами абляции.

При плотности энергии падающего ИК излучения вблизи порога макроскопической абляции ( $F_{IR}^{abl}(1) \approx 0.45$  Дж/см<sup>2</sup> [41]) в образовавшихся впадинах рельефа из-за локального усиления поля значения  $F$  в максимумах интерференционного поля могут достигать довольно больших значений. В этом случае на поверхность переплывается большое количество аблированного материала, формирующего поверх одномерных субволновых решеток структуру микронных пиков (рис.2,б), которой соответствует низкочастотное кольцо в фурье-спектре. Как с ростом числа импульсов при постоянной плотности энергии, так и с ростом плотности энергии при постоянном числе импульсов происходит увеличение самих микропиков, а вместе с этим и увеличение характерного расстояния между ними, что подтверждает уменьшение диаметра низкочастотного кольца в соответствующих фурье-спектрах поверхностей (рис.2, 3, 7). На основе проведенных измерений оценен порог формирования микроструктур:  $F_{IR}^{micro}(1) = 0.56N^{-0.14}$  Дж/см<sup>2</sup>, превышающий порог макроскопической абляции под действием ИК УКИ. Стоит отметить, что показатель степени  $\alpha$  оказался одинаков и для формирования одномерных нанорешеток, и для образования микроструктур ( $\alpha \approx 0.14$ ); это, по-видимому, указывает на универсальность механизма дифракционного вложения энергии УКИ как на стадии начального формирования, так и при последующей деградации нанорешеток.

Как показано в работе [28], облучение поверхности кремния несколькими ИК УКИ дает на поверхности узкие упорядоченные впадины, которые формируют поверхностную решетку с несинусоидальным профилем и с периодом  $\Lambda_1$ , определяемым из соотношения (2). При дальнейшем облучении такой решетки из-за дифракции падающего лазерного поля на поверхности образуются решетки с периодами  $\Lambda_m = \Lambda_1/m \ll \Lambda_1$ , соответствующими пространственным частотам рельефа  $v_x = 1/\Lambda_m = 2\pi m k_{SW}$  [42, 43], где  $m$  – целое положительное число,  $k_{SW}$  – волновое число поверхностной электромагнитной волны (ПЭВ). Существенно, что при сравнении периодов нанорешеток, записанных при различных условиях, необходимо сопоставлять периоды их первых гармоник [42, 43], а не минимальные периоды или периоды наиболее интенсивных гармоник. Главными условиями для возникновения поверхностных нанорешеток с периодами  $\Lambda_m$  являются условие возбуждения ПЭВ на периодически модулированном рельефе поверхности и наличие в его пространственном фурье-спектре высших гармоник (рис.6,б и 9,б) [3, 42, 43]:

$$k_{sw} = \frac{2\pi}{\Lambda_1} = \frac{2\pi}{\lambda} \sqrt{\frac{\epsilon_m \epsilon_d}{\epsilon_m + \epsilon_d}}, \quad (2)$$

где  $\epsilon_m$  и  $\epsilon_d$  – комплексные диэлектрические проницаемости облучаемого материала и контактирующего с ним диэлектрика (воздуха), причем из условия существования ПЭВ необходимо, чтобы  $\text{Re} \epsilon_m < -\epsilon_d$ . Анализ выражения (2) показывает, что возникновение субволновых нанорешеток, наблюдаемых в наших экспериментах, может происходить как для ИК ( $\Lambda \approx 550$  нм), так и для УФ диапазона ( $\Lambda \approx 200$  нм), когда реальная и мнимая части диэлектрической проницаемости фотовозбужденного кремния варьируются в пределах от  $-1$  до  $-4$  и от  $0$  до  $3$  соответственно. В случае облучения полупроводников и других неметаллов в видимом диапазоне лазерными УКИ схожие значения диэлектрической проницаемости ранее действительно наблюдались во многих экспериментах в результате генерации плотной электронно-дырочной плазмы [15, 40, 42–45].

После воздействия УФ УКИ наблюдалась вторая пространственная гармоника рельефа поверхности двух типов – с периодами  $\Lambda_1/2$  и  $\Lambda_H/2$ . В первом случае вторая гармоника в пространственном фурье-спектре присутствует виртуально – исключительно вследствие несинусоидальной формы сечения рельефа поверхности. Во втором случае вторая пространственная гармоника  $\Lambda_H/2$  наблюдается не только в двумерном фурье-спектре поверхности, но и на СЭМ-снимке (рис.9,б), как и при воздействии ИК УКИ (рис.6). При этом в обоих случаях удваивается только высокочастотная пространственная частота, которая соответствует субволновой нанорешетке, что указывает на общую интерференционную природу записи таких решеток, описанную выше.

Невыясненной остается причина возникновения низкочастотной поверхностной нанорешетки при воздействии УФ УКИ, т.к. подобной структуры на других использованных ранее длинах волн не наблюдалось. Схожая ситуация наблюдалась лишь при наноструктурировании ZnO излучением с  $\lambda \approx 248$  нм с длительностью импульсов 450 фс [46], когда период структур оказался значительно больше длины волны.

Еще одно существенное отличие от режима облучения поверхности кремния ИК УКИ при ее структурировании УФ УКИ заключается в отсутствии следов абляции на поверхности при воздействии УФ лазерными импульсами (рис.6,а и б), что может быть связано с преобладанием фотохимических процессов, проходящих на поверхности под действием фемтосекундных лазерных импульсов УФ диапазона. Из-за высокого содержания кислорода в атмосфере во впадинах рельефа происходит образование оксидов кремния  $\text{SiO}_x$ , которые, как известно [36], активно удаляются с поверхности УФ излучением.

## 6. Заключение

Таким образом, в настоящей работе впервые проведено сравнение поверхностных структур, полученных после многоимпульсного воздействия на образцы кремния ИК и УФ УКИ. Проведенный анализ изображений поверхности, полученных с помощью электронной микроскопии, показал, что эволюция топологии поверхности с ростом числа импульсов имеет универсальный характер для указанных двух длин волн, т.е. происходит преобразование из одномерной нанорешетки в двумерную изотропную микро-

структуру. Это подтверждают пространственные фурье-спектры соответствующих изображений поверхности.

Возникновение второй пространственной гармоники структурированного рельефа связано с эффективным преобразованием энергии падающего излучения УФ и ИК УКИ в поверхностные электромагнитные волны на несинусоидальном периодическом рельефе поверхности, образованном после поглощения первых нескольких лазерных импульсов. Дальнейшее развитие высших пространственных гармоник ограничивается их взаимной конкуренцией, что может выражаться, например, в запылении аблированным материалом поверхностных решеток, соответствующих менее интенсивным высшим пространственным гармоникам.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты № 10-08-00941-а, 11-02-01202-а и 11-08-01165-а).

- Guosheng Z., Fauchet P.M., Siegman A.E. *Phys. Rev. B*, **26**, 5366 (1982).
- Sipe J.E., Young J.F., et al. *Phys. Rev. B*, **27**, 1141 (1983).
- Ахманов С.А., Емельянов В.И., Коротеев Н.И. *УФН*, **147**, 675 (1985).
- Young J.F., Preston J.S., et al. *Phys. Rev. B*, **27**, 1155 (1983).
- Young J.F., Sipe J.E., Driel H.M. *Phys. Rev. B*, **30**, 2001 (1984).
- Dolgaev S.I., Lavrishev S.V., et al. *Appl. Phys. A*, **73**, 177 (2001).
- Crouch C.H., Carey J.E., et al. *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 1850 (2004).
- Голосов Е.В., Емельянов В.И. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **90**, 116 (2009).
- Vorobyev A.Y., Makin V.S., Guo C. *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 234301 (2009).
- Голосов Е.В., Ионин А.А. и др. *Российские нанотехнологии*, **6**, 59 (2011).
- Vorobyev A.Y., Guo C. *Appl. Phys. A*, **86**, 321 (2007).
- Couillard M., Borowiec A. et al. *J. Appl. Phys.*, **101**, 033519 (2007).
- Borowiec A., Haugen H.K. *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 4462 (2003).
- Агранат М.Б., Анисимов С.И. и др. *ЖЭТФ*, **115**, 675 (1999).
- Sokolowski-Tinten K., Linde D. *Phys. Rev. B*, **61**, 2643 (2000).
- Агранат М.Б., Анисимов С.И. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **83**, 592 (2006).
- Crouch C.H., Carey J.E., Shen M., et al. *Appl. Phys. A*, **79**, 1635 (2004).
- Costache F., Kouteva-Aguirova S., Reif J. *Appl. Phys. A*, **79**, 1429 (2004).
- Riedel D., Hernandez-Pozos J.L., Palmer R.E., et al. *Appl. Phys. A*, **78**, 381 (2004).
- Yonekubo H., Katayama K., Sawada T. *Appl. Phys. A*, **81**, 843 (2005).
- Narzie R.L., Schuck H., et al. *Opt. Express*, **13**, 6652 (2005).
- Заботнов С.В., Головань Л.А., Остапенко И.А. и др. *Письма в ЖЭТФ*, **83**, 76 (2006).
- Homes V., Miclea M., Hergenroeder R. *Appl. Surf. Sci.*, **252**, 7449 (2006).
- Tan B., Venkatakrishnan K. *J. Micromech. Microeng.*, **16**, 1080 (2006).
- Crawford T.H.R., Haugen H.K. *Appl. Surf. Sci.*, **253**, 4970 (2007).
- Liu Y., Liu S., Wang Y., et al. *Laser Phys.*, **18**, 1148 (2008).
- Li J.M., Xu J.T. *Laser Phys.*, **19**, 121 (2009).
- Huang M., Zhao F., Cheng Y., et al. *Opt. Express*, **18**, A600 (2010).
- Reif J., Varlamova O., Ratzke M., et al. *Appl. Phys. A*, **101**, 361 (2010).
- Wang C., Huo H., et al. *Nanotechnology*, **10**, 075304 (2010).
- Bonse J., Kruger J. *J. Appl. Phys.*, **108**, 034903 (2010).
- Bonse J., Rosenfeld A., Kruger J. *Appl. Surf. Sci.*, **257**, 5420 (2011).
- Ameer-Beg S., Perrie W., et al. *Appl. Surf. Sci.*, **127**, 875 (1998).
- Zorba V., Tzanetakis P., et al. *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 081103 (2006).
- Clark S.E., Emmony D.C. *Phys. Rev. B*, **40**, 2031 (1989).
- Pedraza A.J., Fowlkes J.D., Lowndes D.H. *Appl. Phys. A*, **69**, 731 (1999).
- Землянов А.А., Ионин А.А., Гейнц Ю.Э., Кудряшов С.И. и др. *ЖЭТФ*, **138**, 822 (2010).
- Yong J., Becker M.F., Walser L.M. *J. Opt. Soc. Am. B*, **5**, 648 (1988).
- Bonse J., Baudach S., et al. *Appl. Phys. A*, **74**, 19 (2002).
- Bonse J., Munz M., Sturm H. *J. Appl. Phys.*, **97**, 013538 (2005).
- Кудряшов С.И., Емельянов В.И. *Письма в ЖЭТФ*, **73**, 263 (2001).
- Голосов Е.В., Ионин А.А. и др. *ЖЭТФ*, **140**, 21 (2011).
- Golosov E.V., Ionin A.A., et al. *Phys. Rev. B*, **83**, 115426 (2011).
- Кудряшов С.И., Емельянов В.И. *Письма в ЖЭТФ*, **73**, 751 (2001).
- Кудряшов С.И., Емельянов В.И. *ЖЭТФ*, **121**, 113 (2002).
- Museur L., Michel J.P., et al. *J. Opt. Soc. Am. B*, **27**, 531 (2010).