

Трехволновые взаимодействия поверхностных дефектно-деформационных волн и их проявления в саморганизации нано- и микроструктур при лазерном воздействии на твердые тела

В.И.Емельянов, Д.М.Севальнев

Предложена трактовка самоорганизации наноструктур рельефа поверхности твердых тел под действием потоков энергии и частиц как неустойчивости дефектно-деформационных (ДД) решеток, образованных квазистатическими волнами Лэмба и Рэлея и волнами концентрации дефектов. Учет нелокальности во взаимодействии дефектов с атомами решетки с одновременным учетом обеих (нормальной и продольной) дефектно-индуцированных сил, изгибающих поверхностный слой, приводит к появлению двух максимумов в зависимости инкремента неустойчивости ДД волн от волнового числа. Впервые рассмотрены трехволновые взаимодействия квазистатических ДД волн (генерация второй гармоники и смещение волновых векторов), аналогичные трехволновым взаимодействиям в нелинейной оптике и акустике и приводящие к обогащению спектра гармоник рельефа поверхности. Компьютерная обработка экспериментальных данных по лазерно-индуцированной генерации микро- и наноструктур рельефа поверхности выявляет наличие эффектов генерации второй гармоники и смещения волновых векторов.

Ключевые слова: поверхностные дефектно-деформационные волны, генерация гармоник, смещение волновых векторов, лазерно-индуцированные нано- и микроструктуры.

1. Введение

Нелинейные взаимодействия трех волн с частотами ω_1 , ω_2 и ω_3 (генерация второй гармоники (ГВГ): $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ($\omega_1 = \omega_2$) и смещение частот: $\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$) – классические явления в нелинейной оптике [1] и нелинейной акустике [2]. В настоящей работе мы впервые показываем, что существуют аналоги этих нелинейных волновых эффектов, в которых принимают участие волны нового типа: поверхностные квазистатические (с нулевой частотой) дефектно-деформационные (ДД) волны, возбуждаемые при воздействии лазерного излучения на твердые тела. К этим эффектам относятся ГВГ рельефа поверхности: $q_3 = q_1 + q_2$ ($q_1 = q_2$), и смещение волновых векторов ДД решеток ($q_3 = q_1 \pm q_2$). Если за нелинейно-оптические эффекты ответствен электронный ангармонизм [1], а за нелинейно-акустические эффекты – деформационный ангармонизм [2], то за нелинейные взаимодействия ДД волн, рассмотренные в настоящей работе, ответствен ДД ангармонизм, обусловленный взаимодействием дефектов с полем самосогласованной деформации.

Эти новые нелинейные лазерно-индуцированные эффекты пока не изучались целенаправленно экспериментально, однако компьютерная обработка имеющихся экспериментальных данных по лазерно-индуцированной

генерации микро- и наноструктур рельефа поверхности, проведенная в настоящей работе, выявляет наличие эффектов, которые можно интерпретировать как ГВГ и смещение волновых векторов ДД волн.

Целый ряд процессов самоорганизации нано- и микроструктур на поверхности твердых тел начинается с создания на ней слоя нанометровой или микрометровой толщины, насыщенного подвижными точечными дефектами: междоузлиями, вакансиями, электрон-дырочными парами и допированными атомами. Такая ситуация возникает, например, при образовании ансамбля наноточек при облучении полупроводников и металлов лазерными и ионными пучками (см. обзор [3]). Возникающий в результате облучения поверхностный слой, насыщенный дефектами, имеет постоянную решетки, отличную от постоянной решетки нижележащего слоя кристалла («подложки»). Это приводит к возникновению механического напряжения в поверхностном слое.

Известно, что если плоский напряженный (растянутый) поверхностный слой толщиной h насыщен подвижными точечными дефектами, то при превышении критической концентрации дефектов плоское состояние становится неустойчивым и слой переходит в периодически-изгибное состояние с одновременным скоплением дефектов в экстремумах рельефа [4–6]. При этом смещения среды внутри слоя задаются так же, как и в изгибной волне Лэмба, а в подложке – как в волне Рэлея [6, 7]. Возникающие в результате развития такой ДД неустойчивости спаренные статические лэмбовско-рэлеевские деформации в слое и подложке поддерживаются самосогласованным распределением точечных дефектов, деформирующих упругий континуум. Такое деформированное состояние слоя и подложки представляет собой статический

В.И.Емельянов, Д.М.Севальнев. Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119991 Москва, Воробьевы горы; e-mail: emelyanov.vladimir@gmail.com

аналог динамической лэмбовско-рэлеевской волны, распространяющейся в тонком поверхностном слое с плотностью, превышающей плотность подложки [8].

Возникновение периодического рельефа поверхности сопровождается образованием скоплений дефектов в его экстремумах. При этом междуузлия скапливаются в выступах рельефа, а вакансии – в его впадинах. Такая периодическая модуляция поверхностного рельефа и спаренная с ней решетка скоплений дефектов составляют поверхностную ДД волну (решетку), которая характеризуется волновым вектором \mathbf{q} [6]. В процессе развития ДД неустойчивости амплитуды ДД решеток растут во времени как $\exp(\lambda_q t)$, где λ_q – инкремент нарастания. Значением $q = q_m$, при котором достигается максимум инкремента, определяется период доминирующих решеток $L_m = 2\pi/q_m$, выделяющихся в фурье-спектре поверхностного рельефа. Учет нелокальности во взаимодействии дефектов с атомами решетки при разложении ядра оператора взаимодействия до членов четвертого порядка включительно с одновременным учетом обеих (нормальной и продольной) дефектно-индуцированных сил, изгибающих слой, приводит, при достаточно большом превышении порога неустойчивости (при достаточно большом превышении критической концентрации дефектов), к появлению второго максимума инкремента λ_q при $q = q_c = \pi/h$ [7], которому соответствуют доминирующие решетки с периодом $L_c = 2\pi/q_c = 2h$.

Суперпозиция доминирующих поверхностных ДД решеток с различными по величине и направлению векторами \mathbf{q} образует на изотропной поверхности ячеистую затравочную ДД структуру [3]. Характерный масштаб неоднородности в ней определяется периодом L_m (или L_c). При автоселекции направлений волновых векторов \mathbf{q} (благодаря кристаллической или наведенной анизотропии упругих модулей и коэффициентов диффузии либо благодаря процессам угловой самоорганизации на изотропной поверхности [9]) на поверхности остаются либо два взаимно перпендикулярных направления векторов \mathbf{q} (прямоугольная решетка [5]), либо три направления, ориентированные под углами 60° друг к другу (гексагональная решетка [9]). Таким образом, вдоль выделенных направлений, в зависимости от превышения порога, возбуждаются либо одна ДД волна с волновым вектором \mathbf{q}_m , либо две волны с волновыми векторами \mathbf{q}_m и \mathbf{q}_c . Благодаря нелинейным трехволновым взаимодействиям между ними в процессе развития ДД неустойчивости возможны эффекты ГВГ рельефа поверхности и смещения волновых векторов, описанию и выявлению которых в экспериментальных данных и посвящена данная работа.

В случае достаточно интенсивного лазерного или ионного воздействия затравочная ДД структура (ячеистая, прямоугольная или гексагональная) подвергается «травлению», причем области скопления дефектов протравливаются со скоростью, отличной от скорости травления других областей. Травление «визуализирует» затравочную латентную ДД структуру, которая, таким образом, «навязывает» свою периодичность и симметрию результирующему перманентному рельефу поверхности [3]. Благодаря этому оказывается возможным с помощью фурье-преобразования оптических или АСМ-фотографий поверхности с образовавшимся в результате облучения рельефом выявить эффекты ГВГ и смещения волновых векторов ДД решеток, что и сделано впервые в настоящей работе.

2. Исходные уравнения, описывающие ДД неустойчивость напряженного слоя с подвижными дефектами

Пусть в поверхностном слое кристалла толщиной h при действии на него лазерного или ионного пучка генерируются точечные дефекты с концентрацией n_d ($d = v$ для вакансий, $d = i$ для междуузлий). Плоскость $z = 0$ совпадает со свободной поверхностью образца, ось z направлена от поверхности в глубь образца. Распределение концентрации дефектов в слое запишем в виде

$$n_d(x, y, z, t) = N_d(x, y, t)f(z), \quad (1)$$

где $N_d(x, y, t)$ – концентрация дефектов на поверхности $z = 0$; функция $f(z)$, задающая распределение дефектов по нормали к слою, будет определена ниже (см. формулу (6)).

Уравнение для N_d имеет вид [7]

$$\frac{\partial N_d}{\partial t} = D_d \Delta N_d - \frac{D_d \theta_d}{k_B T} \operatorname{div}[N_d \nabla(\xi + l_d^2 \Delta \xi + L_d^4 \Delta^2 \xi)]|_{z=0}, \quad (2)$$

где

$$\Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}; \quad \nabla = \hat{e}_x \frac{\partial}{\partial x} + \hat{e}_y \frac{\partial}{\partial y}; \quad \operatorname{div} \mathbf{A} = \frac{\partial A_x}{\partial x} + \frac{\partial A_y}{\partial y};$$

\hat{e}_x и \hat{e}_y – единичные векторы вдоль осей x и y ; $\theta_d = \Omega_d K$ – деформационный потенциал дефекта; Ω_d – изменение объема среды при образовании одного дефекта; K – модуль упругости; $\xi = \xi(x, y, z) = \operatorname{div} \mathbf{u}$ – деформация в слое; $\mathbf{u} = \mathbf{u}(x, y, z, t)$ – вектор смещения среды в слое; D_d – коэффициент поверхностной диффузии; T – температура поверхности. Параметры l_d^2 и L_d^4 описывают нелокальность взаимодействия дефекта с атомами решетки и считаются заданными феноменологическими параметрами.

Деформация пленки ξ описывается формулой [10]

$$\xi(x, y, z, t) = -v \left(z - \frac{h}{2} \right) \Delta \zeta(x, y, t), \quad (3)$$

где $v = (1 - 2\sigma_p)/(1 + 2\sigma_p)$; σ_p – коэффициент Пуассона пленки; ζ – изгибная координата пленки (смещение точек срединной плоскости по оси z). Линейная знакопеременная зависимость деформации в слое от координаты z (3) является характерной особенностью волны Лэмба в пластинах [8].

Для координаты ζ запишем линейное уравнение, которое получается обобщением обычного уравнения изгиба свободной пленки [10]:

$$\begin{aligned} & \frac{\partial^2 \zeta}{\partial t^2} + l_0^2 c^2 \Delta^2 \zeta - \frac{\sigma_{\parallel}}{\rho_f} \Delta \zeta \\ & = - \sum_d \left[- \frac{\theta_d}{\rho_f h} \int_0^h \frac{\partial n_d}{\partial z} dz + \frac{v \theta_d}{\rho_f h} \int_0^h \left(z - \frac{h}{2} \right) \Delta n_d dz \right], \quad (4) \end{aligned}$$

где $c^2 = E_f/[\rho_f(1 - \sigma_p^2)]$ – коэффициент жесткости пленки; E_f – модуль Юнга; $l_0^2 = h^2/12$; σ_{\parallel} и ρ_f – продольное напряжение и плотность пленки. Отметим, что изгибная жесткость пленки (коэффициент перед $\Delta^2 \zeta$) зависит от ее толщины h , которая играет роль специфического для ДД

неустойчивости пленки масштабного параметра. В левой части (4) член, пропорциональный σ_{\parallel} , учитывает влияние изотропного продольного напряжения в пленке, возникающего благодаря рассогласованию параметров решетки в пленке и подложке и (или) благодаря генерации дефектов в поверхностном слое. Предполагается, что $\sigma_{\parallel} > 0$, т. е. пленка находится под растягивающим напряжением, которое считается заданным. Второй член в правой части (4) учитывает дефектно-индуцированную изгибающую силу, действующую по нормали к поверхности пленки и возникающую благодаря неравномерному распределению дефектов вдоль оси z , а третий член в правой части – дефектно-индуцированную изгибающую продольную силу, возникающую благодаря неравномерному распределению дефектов вдоль пленки. Отметим, что в более полной постановке задачи следует учесть, что изгиб пленки вызывает появление в подложке вектора смещения u , задаваемого компонентами вектора смещения в квазиэрлеевской волне [7].

Учет реакции подложки показывает, что этой реакцией можно пренебречь, если выполняется условие

$$\sigma_{\parallel} > \mu_s \left(A_m \frac{1 - \beta_s}{\pi h} \right), \tag{5}$$

где $\beta_s = c_{tr}^2/c_{lt}^2$; c_{lt} и c_{tr} – продольная и поперечная скорости звука в подложке; μ_s – модуль сдвига в подложке на границе раздела пленка–подложка. Это условие может быть выполнено, если на границе раздела эффективный модуль сдвига $\mu_s \rightarrow 0$, например при генерации дислокаций несоответствия [11, 12] или благодаря созданию скоплений вакансий под поверхностным слоем в случае пучковых воздействий в результате деформационно-индуцированной накачки вакансий с поверхности в глубь среды [3]. Считая это условие выполненным, мы рассмотрим здесь простейшую модель свободной пленки, т. е. будем пренебрегать реакцией подложки.

В этом случае система уравнений (2)–(4) и (1), при условии определения $f(z)$, является замкнутой системой, описывающей ДД неустойчивость напряженного плоского тонкого поверхностного слоя с подвижными дефектами.

3. Уравнение для фурье-амплитуд; два максимума инкремента ДД неустойчивости как функции волнового числа

Можно показать, что поскольку $h < A_m$, то n_d быстро подстраивается под распределение изгибной деформации по z (3) и является антисимметричной (относительно точки $z = h/2$) функцией z :

$$n_d(x, y, z, t) = \frac{2}{h} \left(\frac{h}{2} - z \right) N_d(x, y, t). \tag{6}$$

Отсюда следует, что

$$n_d(z = 0) = -n_d(z = h) = N_d. \tag{7}$$

Подставляя (6) в правую часть (4) и вычисляя интегралы с учетом (7), в предположении, что деформация адиабатически подстраивается под дефектную подсистему ($\partial^2 \zeta / \partial t^2 = 0$), получаем

$$\Delta^2 \zeta - \frac{1}{l_{\parallel}^2} \Delta \zeta = - \sum_d \left(-A_d - \frac{2v\theta_d}{\rho_f c^2 h} \Delta \right) N_d, \tag{8}$$

где $A_d = 2\theta_d / (hl_0^2 \rho_f c^2)$, а характерный масштабный параметр $l_{\parallel} = h[\rho_f c^2 / (12\sigma_{\parallel})]^{1/2}$.

Используем далее фурье-разложения

$$\zeta(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{q}} \zeta_{\mathbf{q}} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r} + \lambda_{\mathbf{q}} t), \tag{9}$$

$$N_d(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{q}} N_d(\mathbf{q}) \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r} + \lambda_{\mathbf{q}} t).$$

Формулы (9) задают суперпозиционную ДД структуру, составленную из спаренных двумерных (ячеистых) ДД решеток рельефа поверхности и концентрации дефектов. По сути каждая ДД решетка с волновым вектором \mathbf{q} – это изгибная статическая волна Лэмба с длиной волны $\Lambda = 2\pi/q$, поддерживаемая самосогласованным распределением дефектов. Можно показать, что при учете реакции подложки каждая квазистатическая волна Лэмба связана с квазистатической волной Рэлея в подложке с тем же волновым вектором \mathbf{q} [6, 7]. Фурье-амплитуды каждой ДД решетки с волновым вектором \mathbf{q} нарастают во времени с инкрементом $\lambda_{\mathbf{q}}$. Суммирование в суперпозициях (9) проводится как по направлениям, так и по модулю векторов \mathbf{q} . При этом суммирование по модулю $|\mathbf{q}| = q$ выполняется в пределах $q_1 \leq q \leq q_c$, где $q_1 = \pi/L$ – волновое число первой изгибной моды; L – продольный поверхностный размер области с подвижными дефектами; $q_c = \pi/h$ – волновое число предельной изгибной моды [6].

Из (8), используя (9), находим линейную связь между $N_d(\mathbf{q})$ и $\zeta_{\mathbf{q}}$ в ДД решетке с волновым вектором \mathbf{q} :

$$\zeta_{\mathbf{q}} = - \sum_d \frac{2\theta_d}{\rho_f c^2 h l_0^2} (1 + v l_0^2 q^2) (q^4 + l_{\parallel}^2 q^2)^{-1} N_d(\mathbf{q}). \tag{10}$$

Для простоты оставим в (10) вклад дефектов только одного типа. Выполняя фурье-преобразование (2) и подставляя в него (4), (10), получаем уравнение для фурье-амплитуды:

$$\frac{\partial N_d(\mathbf{q})}{\partial t} = \lambda_{\mathbf{q}} N_d(\mathbf{q}) + D_d \frac{1}{N_{cr}} \times \sum_{\mathbf{q}_1} \mathbf{q}\mathbf{q}_1 \frac{1 + v l_0^2 q_1^2}{1 + l_{\parallel}^2 q_1^2} N(\mathbf{q}_1) N(\mathbf{q} - \mathbf{q}_1), \tag{11}$$

где в нелинейном члене мы положили $l_d = 0$ и $L_d = 0$. Инкремент нарастания ДД решетки

$$\lambda_{\mathbf{q}} = -D_d q^2 + D_d q^2 \frac{N_{d0}}{N_{cr}} \frac{(1 + v l_0^2 q^2)(1 - l_d^2 q^2 + L_d^4 q^4)}{1 + l_{\parallel}^2 q^2}, \tag{12}$$

где $N_{d0} = N_d(\mathbf{q} = 0)$ и введена критическая концентрация дефектов $N_{cr} = \sigma_{\parallel} k_B T / (v\theta_d^2)$.

Для численного исследования зависимости (12) удобно перейти к безразмерным переменным $X = l_{\parallel} q$ и $\lambda_X = \lambda_{\mathbf{q}} l_{\parallel}^2 / D_d$, параметрам $a = l_0^2 / l_{\parallel}^2$, $b = l_d^2 / l_{\parallel}^2$, $g = L_d^4 / l_{\parallel}^4$ и ввести управляющий параметр $\varepsilon = N_{d0} / N_{cr}$. В этих обозначениях имеем

$$\lambda_X = -X^2 + X^2 \varepsilon (1 + a v X^2) \frac{1 - b X^2 + g X^4}{1 + X^2}. \tag{13}$$

Зависимости инкремента λ_X от X при двух значениях управляющего параметра ($\varepsilon = 5$ и 10) приведена на рис.1.

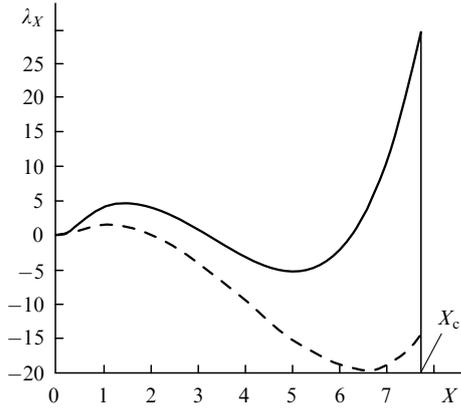


Рис.1. Зависимости безразмерного инкремента нарастания фурье-амплитуды ДД решетки λ'_X от безразмерного волнового числа X при управляющем параметре $\varepsilon = 5$ (штриховая кривая) и 10 (сплошная кривая); $X_c = l_{\parallel} q_c$ – приведенное волновое число предельной изгибающей моды.

При построении зависимостей использовались безразмерные параметры $a = 1.4 \times 10^{-2}$, $b = 1.5 \times 10^{-2}$ и $g = 1.8 \times 10^{-3}$, которые могут быть получены, например, при следующих значениях физических параметров, характерных для образования наноструктур: $h = 10^{-6}$ см, $\rho_f c^2 = 7 \times 10^{11}$ эрг/см³, $\sigma_{\parallel} = 10^{10}$ эрг/см³, $l_d = 3 \times 10^{-7}$ см, $L_d = 5 \times 10^{-7}$ см, $\nu = 0.5$.

Из рис.1 видно, что при концентрациях дефектов, превышающих пороговое значение, инкремент имеет сначала один положительный максимум при $q = q_m$ (соответствующий ему период ДД решетки $\Lambda = \Lambda_m = 2\pi/q_m$), а в случае еще больших концентраций, помимо максимума при $\Lambda = \Lambda_m$, появляется дополнительный положительный максимум в коротковолновой области при

$$|q_c| = \pi/h \quad (\Lambda = \Lambda_c = 2h). \quad (14)$$

Таким образом, максимальный инкремент имеют две ДД решетки с волновыми векторами $q = q_m$ и $q = q_c$.

Длинноволновый максимум инкремента при $\Lambda = \Lambda_m$ (при $q = q_m$) можно описать аналитически, если в (12) пренебречь нелокальностью ДД взаимодействия, положив $l_d = L_d = 0$, и, кроме того, пренебречь продольной изгибающей силой ($\nu l_0^2 q^2 < 1$). Тогда из (12) получаем

$$\lambda_q = -D_d q^2 + D_d q^2 \frac{N_{d0}}{N_{cr}} \frac{1}{1 + l_{\parallel}^2 q^2}. \quad (15)$$

Инкремент λ_q достигает максимального значения λ_m при $q = q_m$, причем

$$q_m = \frac{1}{l_{\parallel}} \left[\left(\frac{N_{d0}}{N_{cr}} \right)^{1/2} - 1 \right]^{1/2}, \quad (16)$$

$$\begin{aligned} \lambda_m &= D_d q_m^2 \left[\left(\frac{N_{d0}}{N_{cr}} \right)^{1/2} - 1 \right] \\ &= \frac{D_d}{l_{\parallel}^2} \left[\left(\frac{N_{d0}}{N_{cr}} \right)^{1/2} - 1 \right]^2 \text{sign} \left[\left(\frac{N_{d0}}{N_{cr}} \right)^{1/2} - 1 \right]. \end{aligned} \quad (17)$$

Из (16), (17) видно, что при превышении критической концентрации дефектов ($N_{d0}/N_{cr} > 1$) одновременно значение q_m становится действительным, а инкремент λ_m – положительным. При $T = 300$ К, $\sigma_{\parallel} = 10^{10}$ эрг/см³, $\theta_d =$

10^2 эВ, $\nu = 0.5$ из (12) получаем оценку критической концентрации: $N_{cr} = 2 \times 10^{16}$ см⁻³.

4. Трехволновые взаимодействия ДД решеток

4.1. Уравнения трехволновых ДД взаимодействий

Рассмотрим теперь нелинейный режим. Ограничимся взаимодействием трех ДД решеток с коллинеарными волновыми векторами $q_1 = q_c$, $q_2 = q_m$ и $q_3 = -(q_c + q_m)$. В частности, в качестве волновых векторов q_c и q_m могут фигурировать волновые векторы, задаваемые формулами (14) и (16), при которых достигается максимум инкремента λ_q .

Уравнения для фурье-амплитуд взаимодействующих решеток следуют из (11) и имеют вид

$$\begin{aligned} \frac{\partial N(q_m)}{\partial t} &= \lambda_{q_m} N(q_m) + D_d \frac{A_m}{N_{cr}} N(q_c + q_m) N(-q_c), \\ \frac{\partial N(q_c)}{\partial t} &= \lambda_{q_c} N(q_c) + D_d \frac{A_c}{N_{cr}} N(q_c + q_m) N(-q_m), \end{aligned} \quad (18)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial N(q_c + q_m)}{\partial t} &= \lambda_{q_c + q_m} N(q_c + q_m) \\ &+ D_d \frac{A_{cm}}{N_{cr}} N(q_c) N(q_m), \end{aligned}$$

где коэффициенты трехволновых ДД взаимодействий

$$\begin{aligned} A_m &= -q_c q_m \frac{1 + \nu l_0^2 q_c^2}{1 + l_{\parallel}^2 q_c^2} + (q_c + q_m) q_m \frac{1 + \nu l_0^2 (q_c + q_m)^2}{1 + l_{\parallel}^2 (q_c + q_m)^2}, \\ A_c &= -q_m q_c \frac{1 + \nu l_0^2 q_m^2}{1 + l_{\parallel}^2 q_m^2} + (q_c + q_m) q_c \frac{1 + \nu l_0^2 (q_c + q_m)^2}{1 + l_{\parallel}^2 (q_c + q_m)^2}, \\ A_{cm} &= q_m (q_c + q_m) \frac{1 + \nu l_0^2 q_m^2}{1 + l_{\parallel}^2 q_m^2} \\ &+ q_c (q_c + q_m) \frac{1 + \nu l_0^2 q_c^2}{1 + l_{\parallel}^2 q_c^2}. \end{aligned} \quad (18')$$

Переходя в (18) к действительным переменным $N_j = n_j \times \exp(i\varphi_j)$, имеем систему трех уравнений для действительных амплитуд n_j ($j = c, m, cm$) и уравнение для разности фаз $\Phi = \varphi_c + \varphi_m - \varphi_{cm}$:

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_m}{\partial t} &= \lambda_m n_m + D_d A_m \frac{n_c n_{cm}}{N_{cr}} \cos \Phi, \\ \frac{\partial n_c}{\partial t} &= \lambda_c n_c + D_d A_c \frac{n_m n_{cm}}{N_{cr}} \cos \Phi, \end{aligned} \quad (19)$$

$$\frac{\partial n_{cm}}{\partial t} = \lambda_{cm} n_{cm} + D_d A_{cm} \frac{n_m n_c}{N_{cr}} \cos \Phi,$$

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} = -\frac{D_d}{N_{cr}} \left(A_m \frac{n_c n_{cm}}{n_m} + A_c \frac{n_m n_{cm}}{n_c} + A_{cm} \frac{n_m n_c}{n_{cm}} \right) \sin \Phi. \quad (20)$$

Уравнение (20) описывает релаксацию фаз: $\Phi \rightarrow 0$. Из сравнения уравнений (20) и (19) видно, что отношение характерного времени релаксации фаз к характерному времени перекачки дефектов из одной ДД решетки в другие $\tau_{ph}/\tau_0 \sim n_j/N_{cr} \sim n_j/N_{d0} \ll 1$. Поэтому при рассмотрении нелинейных преобразований ДД решеток в (19) можно положить $\Phi = 0$.

4.2. ГВГ рельефа поверхности

Рассмотрим одну из ДД решеток. В случае не очень больших превышений порога ДД неустойчивости, когда инкремент нарастания ДД решеток имеет лишь один максимум, это ДД решетка с волновым числом q_m (16). Покажем, что благодаря трехволновым взаимодействиям возможен процесс сложения двух тождественных волновых чисел: $q_{mm} = -q_m - q_m$, в результате которого на поверхности с исходной решеткой с q_m генерируется еще одна ДД решетка с волновым числом $2q_m$. Этот случай соответствует оптическому процессу ГВГ в нелинейном кристалле, если выполняются условия точного синхронизма. Выражения для коэффициентов связи (18') в данном случае приобретают следующий вид:

$$A_m = q_m^2 \frac{1 - 2l_{\parallel}^2 q_m^2}{(1 + l_{\parallel}^2 q_m^2)(1 + 4l_{\parallel}^2 q_m^2)}, \quad A_{mm} = \frac{4q_m^2}{1 + l_{\parallel}^2 q_m^2}.$$

Для численного решения системы (19) перейдем к безразмерному времени $t' = \lambda_m t$, амплитудам $n'_j = n_j/N_{cr}$ и параметрам $A'_j = A_j l_{\parallel}^2$ и $\lambda'_q = \lambda_q l_{\parallel}^2/D_d$, а также положим $\Phi = 0$. Тогда для рассматриваемого случая ГВГ система уравнений (19) принимает вид

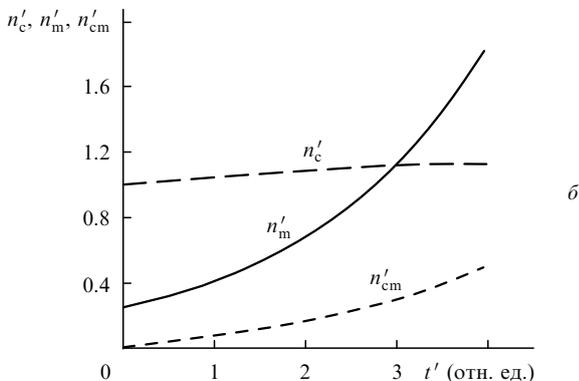
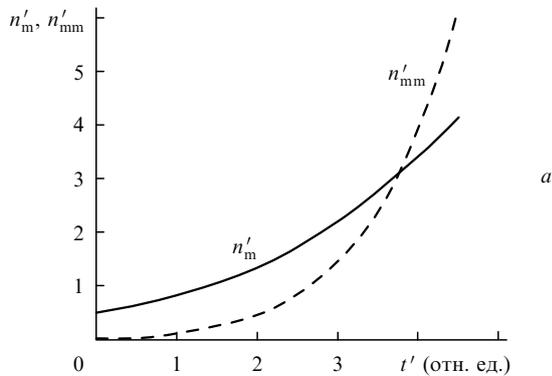


Рис.2. Зависимости от безразмерного времени t' амплитуд первой (n'_m) и второй (n'_mm) гармоник, рассчитанные по формулам (21) при значениях параметров, указанных в тексте (а), а также амплитуд первой (n'_m), второй (n'_c) и третьей (n'_cm) гармоник рельефа поверхности, рассчитанные по формулам (22) при значениях параметров, указанных в тексте (б).

$$\frac{\partial n'_m}{\partial t'} = n'_m + \frac{A'_m}{\lambda'_m} n'_m n'_{mm}, \quad (21)$$

$$\frac{\partial n'_{mm}}{\partial t'} = \frac{\lambda'_{mm}}{\lambda'_m} n'_{mm} + \frac{A'_{mm}}{\lambda'_m} n'_m n'_m.$$

Результаты численного решения данной системы при начальных условиях $n'_m(t=0) = 0.5$, $n'_{mm}(t=0) = 10^{-5}$, показаны на рис.2,а. Значения инкрементов λ'_m и λ'_{mm} рассчитываются по формуле (13) при $a = 1.4 \times 10^{-2}$, $b = 4 \times 10^{-5}$, $g = 10^{-8}$, $\varepsilon = 10$, $\nu = 0.5$. Коэффициенты связи $A'_m = -0.22$, $A'_{mm} = 2.8$ вычислены по формулам (18'). Видно, что за время, превышающее характерное время линейного роста амплитуды первой гармоники ($1/\lambda'_m$), амплитуда второй гармоники благодаря ГВГ начинает превышать амплитуду первой гармоники (линейным ростом амплитуды второй гармоники при данном значении λ'_{mm} можно пренебречь, поскольку при используемых значениях параметров $\lambda'_{mm}/\lambda'_m = 11.5$).

4.3. Смещение волновых векторов

Пусть исходно имеются две коллинеарные ДД решетки с волновыми числами $q_1 = q_m$ и $q_2 \equiv q_c = 2q_m$. Рассмотрим процесс смещения волновых векторов, в результате которого возникает решетка с волновым числом $q_3 \equiv q_{cm} = -(q_1 + q_2) = -3q_m$. В этом случае в безразмерных переменных и при $\Phi = 0$ система (19) принимает вид

$$\frac{\partial n'_m}{\partial t'} = n'_m + \frac{A'_m}{\lambda'_m} n'_c n'_{cm}, \quad \frac{\partial n'_c}{\partial t'} = \frac{\lambda'_c}{\lambda'_m} n'_c + \frac{A'_c}{\lambda'_m} n'_m n'_{cm}, \quad (22)$$

$$\frac{\partial n'_{cm}}{\partial t'} = \frac{\lambda'_{cm}}{\lambda'_m} n'_{cm} + \frac{A'_{cm}}{\lambda'_m} n'_m n'_c.$$

Результаты численного решения системы уравнений (22) при $\lambda'_{cm}/\lambda'_m = -2$, $\lambda'_m/\lambda'_c = 11.5$ приведены на рис.2,б для начальных условий $n'_m(t=0) = 0.25$, $n'_c(t=0) = 1$, $n'_{cm}(t=0) = 10^{-5}$. Инкременты вычислены по формуле (13) при $a = 1.4 \times 10^{-2}$, $b = 4 \times 10^{-5}$, $g = 10^{-8}$, $\varepsilon = 10$, $\nu = 0.5$. Коэффициенты связи $A'_m = -0.12$, $A'_c = -0.7$, $A'_{cm} = 3.5$ рассчитаны по формулам (18'). Видно, что даже при отрицательном инкременте третьей гармоники происходит существенный рост ее амплитуды за счет нелинейного преобразования.

5. Сравнение теории с экспериментом

В работе [13] поверхность (100) кристаллического кремния облучалась линейно поляризованным импульсным излучением неодимового лазера миллисекундной длительности с плотностью энергии вблизи порога плавления. Облучение при нормальном падении излучения на образец приводило к образованию двумерной кристаллографически ориентированной решетки рельефа поверхности с микрометровым периодом, характеристики которой описываются теорией поверхностной ДД неустойчивости [5, 13]. При угле падения 30° рельеф имел более сложный вид, не допускавший такой однозначной интерпретации (рис.3). Крупномасштабные (~ 30 мкм) кристаллографически ориентированные блоки интерпретируются в работе [14] как результат развития термомеханической неустойчивости и в данном случае не представляют интереса.

Интересен относительно мелкомасштабный (микро-

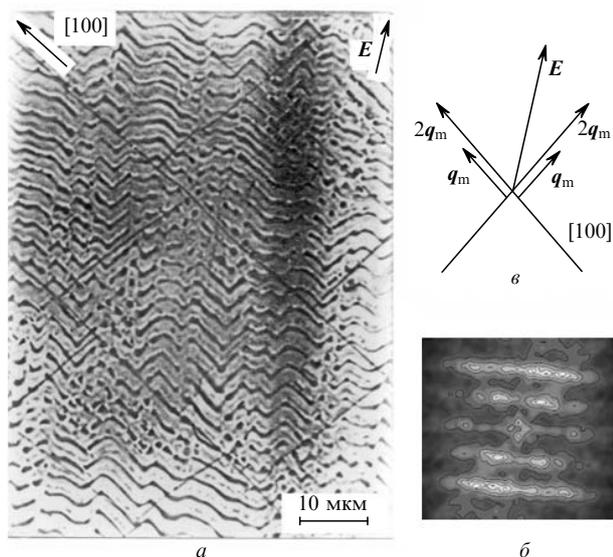


Рис.3. Фотография поверхности (100) Si, облученной миллисекундным импульсом линейно поляризованного лазерного излучения, полученная в оптическом микроскопе [13] (а), фурье-преобразование рельефа поверхности (каждая пара лежащих на диаметре и равноудаленных от центра максимумов соответствует одной решетке рельефа) (б), а также направления векторов q_m и $2q_m$ ДД решеток и вектора напряженности электрического поля E возбуждающего излучения (в).

метровый) рельеф. Фурье-преобразование этого рельефа (рис.3) показывает, что такой сложный микрометровый рельеф образован суперпозицией трех решеток. Одна решетка с волновым вектором, параллельным вектору напряженности поля E возбуждающего излучения, и периодом, зависящим от угла падения, образуется в результате

развития интерференционной неустойчивости [15]. Две другие кристаллографически ориентированные решетки с периодом 3.5 мкм и волновыми векторами q_m вдоль взаимно перпендикулярных направлений типа [100], образуются в результате развития поверхностной ДД неустойчивости [5, 13]. Период этих ДД решеток не зависит от угла падения излучения. Кроме того, четко видны интенсивные кристаллографически ориентированные максимумы, соответствующие двум взаимно перпендикулярным решеткам рельефа с волновыми числами $2|q_m|$, что говорит о ГВГ рельефа. Более внимательное рассмотрение фотографии показывает, что ДД решетка составлена периодическим повторением двух насыщенных темных штрихов и серого штриха между ними. Именно такая картина получается при компьютерном моделировании двумерного изображения рельефа поверхности при наличии первой и второй гармоник (рис.4, б и в).

В работе [16] при облучении Ge импульсным излучением (длительность $\tau_p \sim 1$ мкс, $\lambda = 0.53$ мкм) применялся режим лазерного сканирования внутри прямоугольных областей размером 3×5 мм. Внутри каждой области сканирования фиксировались плотности падающей энергии F при постоянном числе импульсов облучения, проходящихся на каждую точку поверхности, $N = 10^3$ (т.е. полное время облучения каждой точки составляло около миллисекунды). При переходе от одной области сканирования к другой изменялась лишь плотность энергии в каждом импульсе F . Эти изменения осуществлялись вблизи пороговой плотности энергии возникновения неупругой деформации $F_0 \sim 0.1$ Дж/см², характерные интенсивности облучения при этом составляли $\sim 10^5 - 10^6$ Вт/см². По мере увеличения дозы облучения сначала наблюдалось образование неупорядоченного ансамбля

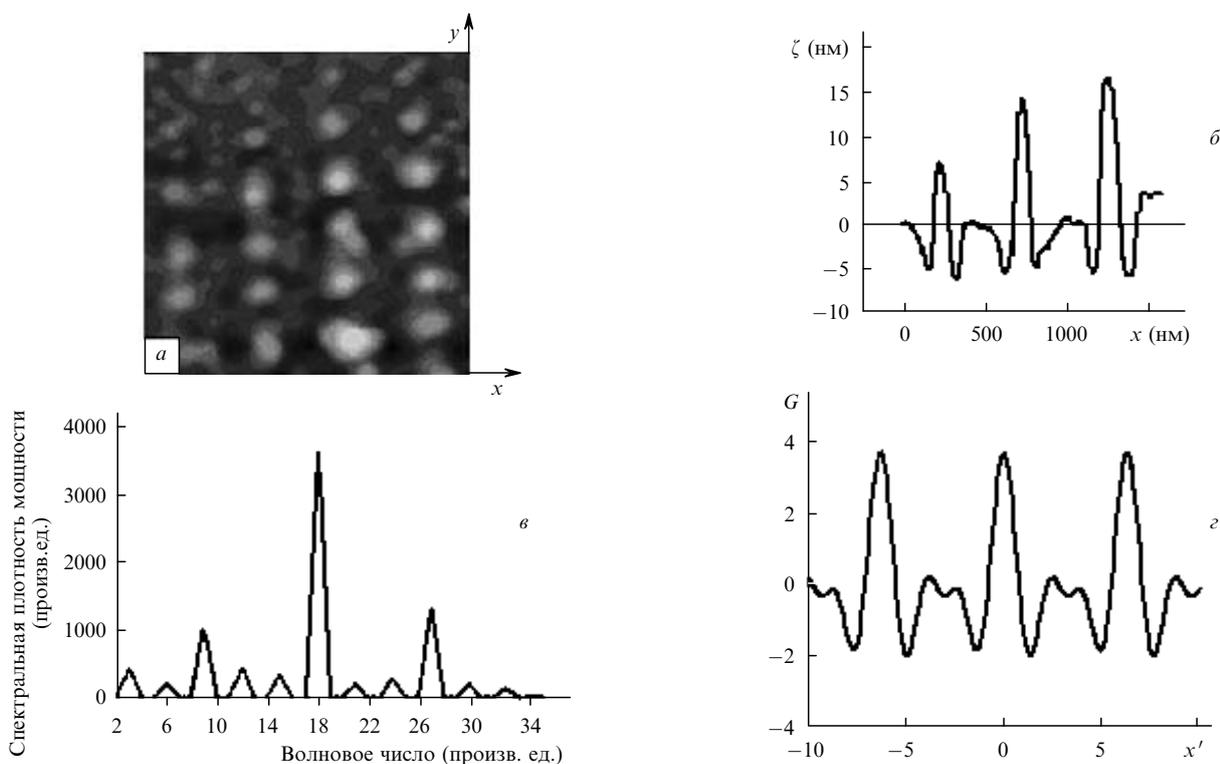


Рис.4. АСМ-фотография поверхности Ge после облучения (а), рельеф поверхности $\zeta(x)$ вдоль оси x , прописанный профилометром [16] (б), спектральная плотность мощности $|\zeta_q|^2$ рельефа поверхности, показанного на рис.4,б (без учета крупномасштабной модуляции) (в) и функция $G(x') = \cos x' + 1.7 \cos(2x' + 0.1) + \cos 3x'$, воспроизводящая профилограмму $\zeta(x)$ без учета крупномасштабной модуляции (г). Амплитуды гармоник в суперпозиции $g(x')$ соответствуют $|\zeta_q|^2$.

нанокластеров, затем – упорядоченной двумерной решетки нанокластеров, ориентированной вдоль сторон прямоугольной просканированной области (рис.4,а), а потом происходил переход к одномерной нанорешетке. ДД теория данного эффекта, описывающая эти переходы и параметры наноструктур, была построена в работах [17, 18].

Необъяснимой до сих пор оставалась форма явно немонохроматического периодического нанорельефа поверхности, прописываемого профилометром (рис.4,б). Ключ к объяснению дает тот факт, что при сложении первой и второй пространственных гармоник возникает рельеф, приблизительно соответствующий экспериментальному. Еще большее соответствие смоделированного рельефа экспериментальному получается при сложении первой, второй и третьей гармоник (ср. рис.4,г и б). Фурье-преобразование экспериментального рельефа, приведенного на рис.4,б, показывает, что действительно доминирующими в спектре являются первая, вторая и третья гармоники рельефа (рис.4,в).

6. Заключение

Таким образом, исследование, проведенное в настоящей работе (см. также [7]), показывает, что рельеф поверхности, образующийся в результате развития ДД неустойчивости, в зависимости от превышения порога может содержать в линейном режиме либо одну, либо две доминирующие гармоники с волновыми векторами q_m (16) и q_c (14). В обоих случаях период модуляции рельефа примерно равен толщине поверхностного дефектно-обогащенного слоя, образующегося в процессе лазерного (в общем случае – пучкового) воздействия, которая может лежать в нанометровом или микрометровом диапазоне [3]. В нелинейном режиме, благодаря трехволновым взаимодействиям, могут появиться дополнительные гармоники с волновыми векторами $2q_m$, $3q_m$, $q_c - q_m$, рассмотренные в настоящей работе, а также и другие гармоники, порождаемые другими процессами трехволновых взаимодействий.

Физический механизм генерации гармоник в случае ДД неустойчивости состоит в пространственном перераспределении дефектов при действии на исходную решетку дефектов решетки самосогласованной деформации. Например, при ГВГ на решетку дефектов с волновым вектором q_m действует решетка деформационно-индуцированных сил с тем же волновым вектором q_m , но сдвинутая по фазе на $\pi/2$. Это приводит к возникно-

ванию решетки потоков дефектов с волновым вектором $2q_m$, которая служит источником в уравнении для концентрации дефектов (2) (или, в фурье-представлении, в уравнении (11)). Следовательно, нелинейный (квадратичный) поток дефектов в рассматриваемом случае ГВГ рельефа поверхности аналогичен квадратичной поляризации среды (или току) в случае генерации второй оптической гармоники.

Наличие двух максимумов инкремента нарастания и возможность нелинейной генерации ДД гармоник рельефа следует учитывать при анализе экспериментальных данных по генерации рельефа поверхности, возникающего при воздействии лазерного излучения на твердые тела. Так, возникновение двух масштабов модуляции рельефа является характерной особенностью процессов генерации нано- и микроструктур при лазерном и ионном травлении поверхности полупроводников [3]. Трехволновые взаимодействия, как показано в настоящей работе, приводят к ГВГ. Можно ожидать, что при еще больших превышениях порога учет нелинейных взаимодействий более высоких порядков будет приводить к дальнейшему обогащению спектра гармоник рельефа поверхности.

1. Ахманов С.А., Хохлов Р.В. *Проблемы нелинейной оптики* (М.: изд. ВИНТИ, 1965).
2. Руденко О.В., Солуян С.И. *Теоретические основы нелинейной акустики* (М.: Наука, 1975).
3. Emel'yanov V.I. *Laser Phys.*, **18**, 682 (2008).
4. Емельянов В.И. В сб.: *Нелинейные волны (лекции на VII Всесоюз. школе по нелинейным волнам, Горький, 1987)* (М.: Наука, 1989, с. 198).
5. Emel'yanov V.I. *Laser Phys.*, **2**, 389 (1992).
6. Емельянов В.И. *Квантовая электроника*, **28**, 2 (1999).
7. Emel'yanov V.I. *Laser Phys.*, **18**, 1435 (2008).
8. Викторов И.А. *Звуковые поверхностные волны в твердых телах* (М.: Наука, 1981).
9. Emel'yanov V.I., Mikaberidze A.I. *Phys. Rev. B*, **72**, 235407 (2005).
10. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. *Теория упругости* (М.: Наука, 1987).
11. Bottani C.E., Yakona M. *J. Phys.: Condens. Matter*, **1**, 8337 (1989).
12. Dodson B.W., Tsao J.Y. *Appl. Phys. Lett.*, **51**, 1325 (1987).
13. Banishev A.F., Emel'yanov V.I., Novikov M.M. *Laser Phys.*, **2**, 178 (1992).
14. Емельянов В.И., Еремин К.И. *Квантовая электроника*, **31**, 154 (2001).
15. Ахманов С.А., Емельянов В.И., Коротеев Н.И., Семиногов В.Н. *УФН*, **147**, 675 (1985).
16. Винценц С.В., Зайцева А.В., Плотников Г.С. *ФТП*, **37**, 134 (2003).
17. Емельянов В.И., Винценц С.В., Плотников Г.С. *Поверхность*, № 11, 55 (2007).
18. Емельянов В.И., Зайцев В.Б., Плотников Г.С. *Поверхность*, № 5, 1 (2008).