

05;07

## **Диссипативные наноструктуры и универсальность Фейгенбаума в неравновесной нелинейной динамической системе металл—мощное поляризованное ультракороткоимпульсное излучение**

© *В.С. Макин, Р.С. Макин, А.Я. Воробьев, Чунлей Гуо*

НИИ комплексных испытаний оптико-электронных приборов,  
Сосновый Бор, Ленинградская обл.  
Ульяновский государственный университет, Димитровградский филиал,  
Димитровград, Ульяновская обл.  
Институт оптики Рочестерского университета, Нью-Йорк 14627, США  
E-mail: makin@sbor.net

*Поступило в Редакцию 27 июля 2007 г.*

Впервые обнаружен эффект скачкообразного уменьшения пространственного периода резонансного нанорельефа на поверхности металла под действием серии импульсов фемтосекундного лазерного излучения. Остаточный нанорельеф поверхности, формирующийся в рамках универсальной поляритонной модели, обусловлен образованием стоячей картины при интерференции падающей волны с возбуждаемыми ею поверхностными плазмонами. Показано, что образование резонансных наноструктур на поверхности титана с двумя пространственными периодами, отличающимися в два раза, полностью укладывается в рамки универсальной поляритонной модели. Интерпретация образования наноструктур в системе мощного фемтосекундного излучения, взаимодействующего с поверхностью металла, с кратными периодами проведена также на основе математической модели универсальности Фейгенбаума, где в качестве управляющего (бифуркационного) параметра выступает величина, пропорциональная числу импульсов воздействующего лазерного излучения.

PACS: 61.80.-x

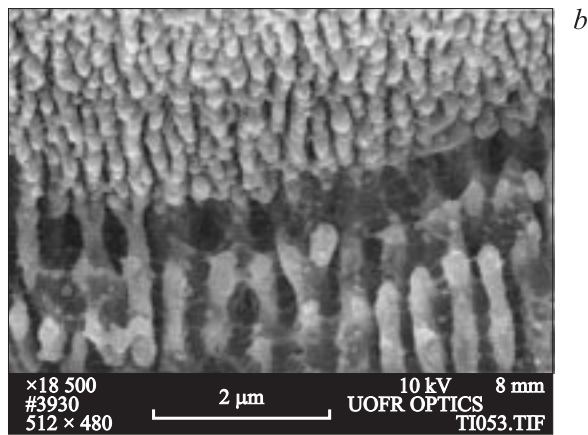
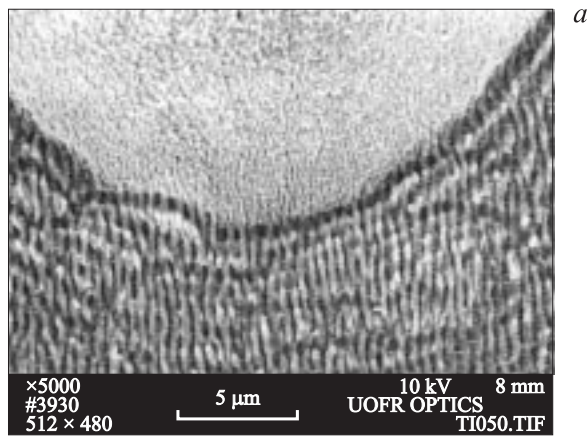
В сложном поведении нелинейных диссипативных систем обнаруживаются некоторые общие закономерности. К их числу относятся

и известная универсальность Фейгенбаума удвоения периодов диссипативных структур, и переход системы в хаотическое состояние (упорядоченного хаоса). К числу экспериментальных реализаций такого сценария поведения нелинейных диссипативных систем относятся начальные стадии турбулизации потоков жидкости [1], поведение атмосферного барьерного разряда в газе [2], поведение ритмов сердечно-сосудистой системы [3], поведение пространственных структур в ячейке Рэлея–Бенара при приложении переменного поперечного магнитного поля [4], осцилляционные удвоения периода в каталитических процессах [5], удвоение периода в лазерном диоде с резонатором Фабри-Перо при инъекции оптического импульса и переход к хаосу [6] и другие.

В настоящем сообщении приведены результаты экспериментов по скачкообразному изменению периода остаточных поверхностных резонансных наноструктур, формируемых под действием серии импульсов фемтосекундного лазерного излучения на исходной полированной поверхности массивного титана. В экспериментах использовалось излучение лазера на титан-сапфире с центральной длиной волны  $\lambda = 800$  nm, длительностью импульса  $\tau = 66$  fs, энергией в импульсе около 1 mJ и максимальной частотой повторения импульсов  $f = 1$  kHz.

В качестве образцов использовались массивные оптически полированные пластины титана. Типичный диаметр области воздействия лазерного излучения, фокусируемого на поверхность образца линзой, составлял 0.9 mm. Характерная плотность мощности лазерного излучения на поверхности образца составляла  $q \approx 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>. Излучение направляли по нормали к поверхности образца. Изучение характера остаточного (остающегося после остывания образца) нанорельефа, образующегося на разных стадиях после воздействия импульсов излучения, осуществлялось с использованием сканирующего электронного микроскопа.

В экспериментах изучался нанорельеф поверхности, формируемый при воздействии серии импульсов линейно поляризованного лазерного излучения (см. рис. 1). Опыты показали, что за серию  $\sim 50$ –100 импульсов излучения формируется резонансный нанорельеф с волновым вектором  $\mathbf{g} \parallel \mathbf{E}$  и периодом  $d_1 \approx 600$  nm (см. рис. 1, *a*). Здесь  $\mathbf{E}$  — вектор электрического поля лазерного излучения. При увеличении количества лазерных импульсов ( $N$ ), подаваемых в зону облучения, свыше  $N \geq 200$  в центральной части зоны облучения обнаруживалось формирование структур с периодом  $d_2 = 300$  nm =  $d_1/2$  (см. рис. 1, *b*). В переходной



**Рис. 1.** Фотографии рельефа поверхности титана, облученного серией импульсов линейно поляризованного излучения с плотностью мощности  $q = 1.110^{12} \text{ W/cm}^2$ ,  $N = 100$ , полученные с использованием сканирующего электронного микроскопа: *a* — область периодических наноструктур с основным периодом  $d_0 \approx 600 \text{ nm}$ ; *b* — структуры с периодом  $d_1 \approx 300 \text{ nm}$  в центральной части зоны облучения и пространственная область бифуркационного перехода между наноструктурами с различными периодами.

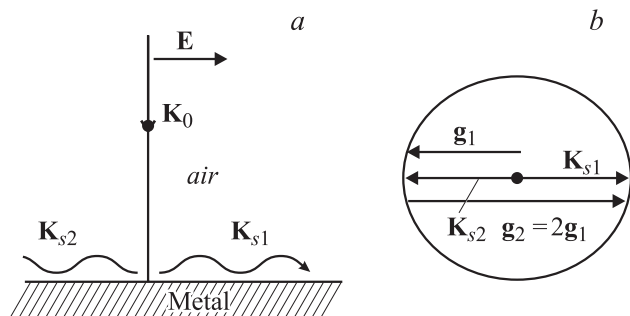
области осуществлялось характерное бифуркационное поведение упорядоченных наноструктур (см. рис. 1, *b*). Описанное поведение резонансных наноструктур, соответствующее обратному удвоению периода, на металлах наблюдалось впервые и является особенностью, присущей ультракоротким длительностям лазерного излучения.

Образование структур с периодом  $d_1$  на поверхности титана объясняется в рамках универсальной поляритонной модели лазерно-индуцированного разрушения конденсированных сред и обусловлено интерференцией лазерного излучения с возбуждаемыми им поверхностными плазмонами. Оценим экспериментальную величину действительной части показателя преломления границы раздела титан–воздух для поверхностного плазмона ( $\eta$ ), определяемую свойствами высокотемпературного неравновесного электронного газа в титане и наногетероструктур его поверхности [7], которая характеризует степень замедления поверхностного плазмона по сравнению со скоростью света в вакууме (волновой вектор  $\mathbf{k}_0$ ), при его распространении вдоль реальной границы раздела:  $\eta = g/k_0 = \lambda/d = 800/600 \approx 1.3$ .

Согласно известной универсальной поляритонной модели разрушения поверхности конденсированных сред, интенсивность суммарного интерференционного поля  $\mathcal{I}$  при воздействии линейно поляризованного лазерного излучения по нормали к поверхности металла в условиях возбуждения поверхностных плазмонов можно представить в следующем виде, с учетом того, что поверхностные плазмоны распространяются в направлении  $\pm x$  (направления их преимущественного распространения):

$$\mathcal{I}(x) = I(x) + (I_{s1})^{1/2} \sin(\mathbf{g}_1 \mathbf{x} + \varphi) + (I_{s1} I_{s2})^{1/2} \sin(\mathbf{g}_2 \mathbf{x} + \psi). \quad (1)$$

Здесь  $I(x)$  — интенсивность поглощаемого падающего лазерного излучения,  $I_{s_i}(x)$  — зависящая от координаты интенсивность поглощения возбуждаемых поверхностных плазмонов; индексы  $i = 1, 2$  отвечают направлениям распространения поверхностных плазмонов во взаимно противоположных направлениях распространения,  $I_s$  — суммарная интенсивность поглощения поверхностных плазмонов, распространяющихся в противоположных направлениях (смотри также схему воздействия лазерного излучения на рис. 2, *a*). Волновой вектор основной решетки  $\mathbf{g}_1 = \mathbf{k}_{s1} = -\mathbf{k}_{s2}$ , формирование которой обусловлено интерференцией падающего излучения и поверхностного плазмона (см. рис. 2, *b*), в данном случае равен волновым векторам



**Рис. 2.** *a* — схема возбуждения поверхностных плазмонов ( $k_{s1}, k_{s2}$ ) при взаимодействии линейно поляризованного лазерного излучения, направленного по нормали к поверхности, с металлом; *b* — круговая векторная диаграмма, иллюстрирующая закон сохранения квазиимпульса и образования решеток нанорельефа на поверхности металла за счет интерференции падающей волны с поверхностными плазмонами (решетка  $g_1$ ) и за счет взаимной интерференции поверхностных плазмонов (решетка  $2g_1$ ).

поверхностных плазмонов, распространяющихся в противоположных направлениях и приводящих к формированию двукратно вырожденной решетки; волновой вектор решетки  $g_2 = k_{s1} + k_{s2}$  обусловлен взаимной интерференцией поверхностных плазмонов с противоположными направлениями распространения (рис. 2, *b*);  $\varphi, \psi$  — фазовые углы между соответствующими волнами. В выражении (1) предполагается, что поверхностные плазмоны распространяются в направлениях  $\pm x$ , т.е. в первом приближении пренебрегается волнами поверхностных плазмонов, распространяющимися в близких направлениях.

Первое слагаемое в (1) дает постоянную составляющую  $I(x)$  в суммарной интенсивности электромагнитного поля  $\mathcal{J}(x)$ . При сравнительно низких интенсивностях лазерного излучения (и малых величинах высот решеток резонансного нанорельефа) основной вклад в образование периодических структур дает интерференция падающего излучения с возбуждаемыми им поверхностными плазмонами (второе слагаемое в правой части выражения (1)). Поскольку при малых значениях высоты резонансного нанорельефа ( $h$ ) величина электрического поля поверхностного плазмона  $E_s = \xi h E$  [8], то на начальных стадиях формирования регулярных поверхностных наноструктур в модуляцион-

ной части выражения (1) доминирует второе слагаемое. Здесь  $E$  — амплитуда электрического поля падающей волны,  $\xi$  — коэффициент пропорциональности. В этих условиях второе слагаемое оказывается пропорциональным  $(I_s)^{1/2} \sim h$ . Это приводит, с увеличением числа импульсов лазерного излучения  $N$  (при нормальном падении излучения), к формированию резонансной остаточной нанорешетки рельефа с периодом  $d = \lambda/\eta$ . Здесь  $\lambda$  — центральная длина волны падающего лазерного излучения,  $\eta = \text{Re}[\varepsilon/(\varepsilon + 1)]^{1/2}$  — показатель преломления границы раздела металл–вакуум для поверхностных плазмонов,  $\varepsilon(\omega)$  — диэлектрическая проницаемость металла,  $\omega$  — центральная частота лазерного излучения.

При нормальном падении света на формирующейся решетке  $g_1$  одновременно идет процесс резонансного возбуждения поверхностных плазмонов, распространяющихся во взаимно противоположных направлениях, с положительной обратной связью по амплитуде решетки  $h$ . С ростом количества импульсов излучения  $N$ , амплитуды остаточного резонансного нанорельефа и интенсивности возбуждаемых поверхностных плазмонов ( $I_s > I$ ) основную роль начинает играть третье слагаемое в правой части выражения (1), отражающее интерференцию поверхностных плазмонов, распространяющихся во взаимно противоположных направлениях. Их взаимная интерференция [9], а также интерференция второй пространственной гармоники поверхностного плазмона (волновой вектор  $k_{s2} = k_{s0} + g_1$ ,  $\omega_1 = \omega$ ,  $i = 1, 2$ ) с падающим излучением [10] приводят к формированию вырожденных структур с периодом  $d = \lambda/2\eta$  и к более эффективному преобразованию энергии падающего излучения в поверхностные плазмоны (ПП) (в правой части выражения (1) второе слагаемое оказывается малым по сравнению с третьим). Здесь  $k_{s0}$  — волновой вектор поверхностного плазмона для плоской границы раздела металл–воздух,  $\omega_2$  — частота второй пространственной гармоники поверхностного плазмона. Отметим, что переход в выражении (1) к квадратичной зависимости от амплитуды рельефа возможен и во втором слагаемом, при больших амплитудах решетки нанорельефа [8].

Физические представления о механизмах формирования резонансных наноструктур (поляритонная модель) позволяют предсказывать формирование нанорельефа с пространственными периодами, кратными 2 ( $\lambda$ ,  $\lambda/2$ ,  $\lambda/4$ ,  $\lambda/8$ , ...), в том числе за счет интерференции пространственных гармоник поверхностных плазмонов [10].

Математической моделью, объясняющей формирование структур с кратными периодами, является модель логистического отображения. В качестве переменной величины  $x$  в логистическом отображении, моделирующем исследуемый физический процесс, будем рассматривать корень квадратный из нормированной на поглощенную интенсивность падающего излучения величины интенсивности поглощения поверхностных плазмонов,  $x \sim (I_s/I)^{1/2} \sim E_s/E$ . Интенсивность поглощения падающего излучения  $I$  при многоимпульсном воздействии растет с ростом  $N$ . В первом приближении будем полагать, что  $\mathcal{J}(x) = \beta NI(N = 1)$ . Ввиду линейности зависимости электрического поля поверхностного плазмона  $E_s$  от  $E$  при малых  $h$  [8],  $E_s \sim N$ . Поэтому в качестве управляющего (бифуркационного) параметра [11] в логистическое отображение введем величину  $\mu \sim \gamma N$ . Здесь  $\beta, \gamma$  — постоянные величины, не зависящие от  $N$  и амплитуды электрического поля  $E$ . При этом одномерное логистическое отображение, моделирующее исследуемый физический процесс, имеет простой вид:

$$f(x, \mu) = 1 + \mu x(1 - x), \quad x \in [0, 1], \quad \mu \in [\mu_1, \mu_2]. \quad (2)$$

Оказывается, что сложное непериодическое поведение одномерной динамической системы не связано со своеобразием логистического отображения (2) и имеет место для всех унимодальных отображений, т.е. отображений  $f$ , имеющих на заданном интервале единственный экстремум.

Следуя Фейгенбауму [1,12,13], построим бифуркационную диаграмму каскада удвоений периода для отображения типа (2) (рис. 3). Здесь предельное соотношение

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \frac{d_{n+1}}{d_n} = \alpha \quad (3)$$

определяет одну из так называемых универсальных постоянных Фейгенбаума  $\alpha$ , точное значение которой равно  $\alpha = 2.50290785$  [13]. Универсальная постоянная  $\alpha$  определяет скейлинг переменной  $x$  в отображении  $f(x, y)$ . Другая переменная  $\mu$  также определяет скейлинг вида

$$\mu_n - \mu_\infty \sim \delta^{-n}. \quad (4)$$

Здесь  $\delta (= 4.6692016 \dots)$  — другая универсальная постоянная Фейгенбаума,  $\mu_\infty$  — предельное значение параметра  $\mu$  при  $n \rightarrow \infty$ .

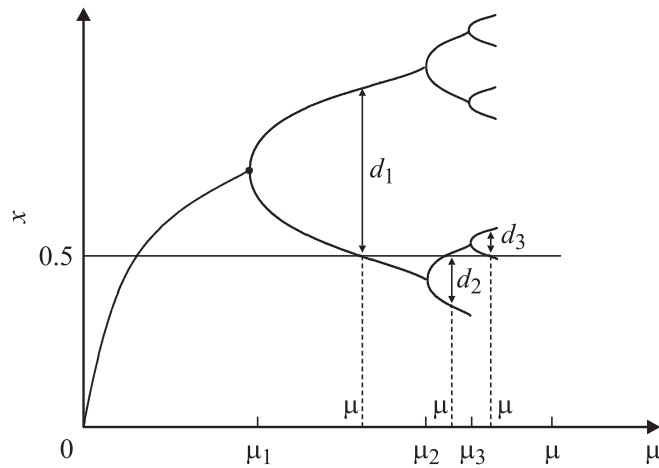


Рис. 3. Бифуркационная диаграмма обратного каскада Фейгенбаума.

Из бифуркационной диаграммы рис. 3 следует, что величина  $d_n$  есть расстояние между значениями  $x = 1/2$  и ближайшим к этой точке элементом цикла периода  $2^n$  при  $\mu = \mu_n^*$ , где  $\mu_n^*$  — значение параметра  $\mu$ , соответствующее суперциклу периода  $2^n$ . Этот ближайший элемент есть  $2^{n-1}$  итерация точки  $x = 1/2$ , поэтому

$$d_n = f^{2^{n-1}}(1/2, \mu_n^*) - \frac{1}{2}.$$

В отличие от известных моделей и примеров удвоения периода Фейгенбаума в нашем случае реализуется обратное удвоение периода диссипативных наноструктур, посредством которого сильнонеравновесная система переходит к сложному непериодическому состоянию. К сожалению, условия эксперимента не позволили обнаружить следующие, более малые периоды наноструктур. Результатом такого перехода является выраженный фрактальный характер того, что мы продолжаем называть поверхностью металла.

Рассмотрим важный вопрос о размерности (нерегулярного) аттрактора унимодального отображения (2), который рождается при завершении каскада бифуркаций Фейгенбаума (аттрактор Фейгенбаума) [11,14–16]. Поскольку аттрактор Фейгенбаума является канто-



ровским совершенным нигде не плотным множеством, то в данном случае наиболее приемлемо использование фрактальной размерности [14,15,17]. Аттрактор Фейгенбаума точечного унимодального одномерного отображения является фракталом и имеет дробную размерность  $d_F = \ln 2 / [\ln 2\alpha^2 / (\alpha + 1)] = 0.543$ .

Таким образом, экспериментально обнаруженное кратное скачкообразное уменьшение пространственного периода нанорельефа поверхности титана, образующегося под действием серии фемтосекундных импульсов лазерного излучения, физически объяснено на основе универсальной поляритонной модели разрушения поверхностей конденсированных сред, как результат взаимной интерференции поверхностных плазмонов. Рассмотренный простой пример кратного изменения пространственного масштаба наноструктур является важной экспериментальной реализацией универсальной последовательности бифуркаций обратного удвоения периодов структур Фейгенбаума в сильно неравновесных динамических нелинейных диссипативных системах, математической моделью которых является одномерное унимодальное отображение.

## Список литературы

- [1] Фейгенбаум М. // УФН. 1983. Т. 141. В. 2. С. 343–374.
- [2] Wang Y.H., Zhang Y.T., Wang D.Z., Kong M.G. // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 90. P. 071501. Sijacic D.D., Ebert U., Rafatov I. // Phys. Rev. E. 2004. V. 70. P. 056220.
- [3] Marsh D.J., Sosnovtseva O.V., Mosekilde E., Rathlou N.-H.-H. // Chaos. 2007. V. 17. P. 015114.
- [4] Marek M., Schejbal M., Koci P., Nevoral V., Kubicek M., Hadac O., Schreiber I. // Chaos. 2006. V. 16. P. 037107.
- [5] Glazier J.A., Jensen M.H., Libchaber A., Stavans J. // Phys. Rev. A. 1986. V. 34. N 2. P. 1621–1624.
- [6] Zhao X.P., Wang Y.-C., Zhang M.-J., Au Y., Wang J.-L. // Chinese Phys. Lett. V. 24. N 7. P. 1949–1952.
- [7] Vorobyev A.Y., Makin V.S., Guo C. // J. Appl. Phys. 2007. V. 101. N 3. P. 034903–1–4.
- [8] Jha S.S., Kirtley J.R., Tsang J.S. // Phys. Rev. B. 1980. V. 22. N 8. P. 3972–3982.
- [9] Баженов В.В., Бонч-Бруевич А.М., Либенсон М.Н., Макин В.С. // Письма в ЖТФ. 1984. Т. 10. В. 24. С. 1520–1527.

- [10] *Макин В.С.* Интерференция пространственных гармоник поверхностных плазмон-поляритонов и формирование регулярного рельефа поверхности: Сб. воспоминаний и статей памяти М.Н. Либенсона. СПб.: Изд-во ИТМО, 2005. С. 151–155.
- [11] *Collet P., Eckmann J.-P.* Iterated maps on the interval as dynamical systems. Basel, Stuttgart, Birkhauser, 1980.
- [12] *Feigenbaum M.J.* // J. Statist. Phys. 1978. V. 21. N 6. P. 669–706.
- [13] *Feigenbaum M.J.* // J. Statist. Phys. 1978. V. 19. N 1. P. 25–52.
- [14] *Вул Е.Б., Синай Я.Г., Ханин К.М.* // УМН. 1984. Т. 39. № 3. С. 3–37.
- [15] *Гукенхеймер Дж., Холмс П.* Нелинейные колебания, динамические системы и бифуркации векторных полей. Ижевск: РЖД, 2002.
- [16] *Макин Р.С.* // Дифференциальные уравнения. 2005. Т. 41. № 4. С. 479–489.
- [17] *Шустер Г.* Детерминированный хаос: Введение. М.: Мир, 1988.