

ОТЗЫВ

официального оппонента

на диссертацию Кудряшова Сергея Ивановича **«Взаимодействие фемтосекундных лазерных импульсов в режиме абляции с металлами и полупроводниками, обладающими сильным межзонным поглощением»**, представленную на соискание ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.21 – лазерная физика

Исследование фундаментальных черт такого мультимасштабного во временном и пространственном плане физического явления как абляция поверхности материалов ультракороткими лазерными импульсами охватывает целый ряд релаксационных стадий – взаимодействия излучения с веществом, электронной, решеточной и фазовой динамики, гидродинамики. Помимо финального результата – абляционного удаления вещества, каждая из указанных стадий представляет отдельный фундаментальный и прикладной интерес. Это относится к исследованиям оптики ультракоротких лазерных импульсов в веществе, сверхбыстрой электронной динамики, электронно-индуцированных структурных процессов в кристаллической решетке, предельных режимов фазовых превращений и механических нагрузок материалов, временных и пространственных особенностей удаления вещества в разных режимах абляции, а также связанных с ними важных практических применений, которые еще только начинают развиваться. Очевидно, что для полноценного понимания каждой из стадий требуется проследить как предшествующие, так и последующие, то есть сформировать преемственную динамическую картину явления, важную для не осуществленного пока понимания общего результата. Таким образом, для формирования целостной феноменологической картины абляции поверхности материалов ультракороткими лазерными импульсами необходимы разноплановые взаимодополняющие экспериментальные исследования, подтвержденные расчетом. Именно эта задача решается в рамках данной **актуальной** диссертационной работы.

Диссертационная работа Кудряшова Сергея Ивановича посвящена последовательному исследованию основных стадий абляции поверхности материалов ультракороткими лазерными импульсами фемто- и пикосекундного диапазона, развивающихся на временных масштабах от фемто- до наносекунд. В работе исследованы различные фундаментальные механизмы удаления вещества (эмиссия плазмы, откол расплава и гидродинамический разлет закритического флюида) и их ключевые параметры. Особенно ценно, что при этом использованы взаимодополняющие методы модуляционной оптической рефлектометрии с фемтосекундным временным и субмикронным пространственным разрешением, широкополосной фотоакустической спектроскопии, оптической профилометрии, сканирующей электронной микроскопии, электрических зондовых измерений. В процессе работы к исследованию процессов лазерной абляции не только адаптированы уже известные методы, но также предложен и разработан ряд оригинальных методик рефлектометрических, акустических и зондовых измерений. Количественное описание наблюдаемых основных стадий абляции в рамках существующих феноменологических моделей позволило впервые установить или существенно уточнить их важные количественные характеристики. Одним из основных результатов работы является предлагаемая впервые оригинальная целостная феноменологическая картина абляции поверхности материалов ультракороткими лазерными импульсами фемто- и пикосекундного диапазона, с количественной характеристикой основных стадий и уникальным арсеналом методов исследования разномасштабных абляционных процессов.

Диссертационная работа содержит введение, семь основных глав и заключение, и изложена на 271 странице с 129 рисунками и 3 таблицами. Список литературы включает 336 наименований.

Во введении обоснована актуальность темы диссертации, сформулированы цели и решаемые задачи, представлены научная новизна и практическая значимость полученных результатов, выносимые на защиту положения, сведения об апробации работы и личном вкладе автора.

Первая глава является обзором литературы. В ней на примере предшествующих экспериментальных и теоретических исследований

последовательно рассматриваются основные стадии лазерной абляции ультракороткими лазерными импульсами как сложного неравновесного, мультимасштабного явления, включающие нелинейное поглощение энергии УКИ и развитие электронной динамики, перенос энергии из электронной подсистемы в решетку, нагревание и плавление вещества, генерацию ударных волн, абляционное удаление материала. Для этих стадий отмечается ряд ключевых физических эффектов, которые качественно известны и теоретически предсказаны, но до сих пор экспериментально не исследованы в количественном отношении. Указана специфика материалов с сильным межзонным поглощением, требующая универсального описания как межзонных переходов в лазерном поле, так и внутризонных переходов как исходных, так и фотоинжектированных свободных носителей.

Во второй главе приведены блок-схемы и параметры использованных лазерных систем ультракоротких лазерных импульсов, схемы экспериментальных установок и их описание, представлены методики проведения экспериментов и измерений, указано использовавшееся в экспериментах оборудование и материалы.

В третьей главе с помощью комплекса взаимодополняющих времязрешенных методов измерения отражения УКИ накачки («самоотражения») и слабых пробных УКИ, задержанных по отношению к УКИ накачки, а также коллекторной методики сбора эмитированных заряженных частиц изучена сверхбыстрая электронная динамика в алюминии и титане для условий возбуждения, когда межзонное поглощение велико и доминирует над внутризонным. Эти металлы в значительной степени имитируют поведение сильно фотовозбужденных полупроводников и полуметаллов, однако, в отличие от последних, не проявляют сильных динамических изменений зонного спектра. В итоге показано, что при малой поверхностной плотности энергии лазерного излучения в оптическом отклике материала доминирует межзонное поглощение с минимальным нагревом электронной подсистемы и слабой термоэлектронной эмиссией, тогда как при росте энергии его насыщение приводит к резкому увеличению электронной температуры и нелинейной эмиссии заряженных частиц.

В четвертой главе исследована сверхбыстрая электронная динамика и связанная с ней сверхбыстрая динамика модуляции линейной оптической компоненты диэлектрической проницаемости на поверхностях полуметаллов и полупроводников с более сложными особенностями динамики. В частности, обнаружено изменение на много порядков плотности носителей и связанное с этим значительное сужение зонной щели в режиме абляции ультракороткими лазерными импульсами. Показано, что

1) при возбуждении плотной электрон-дырочной плазмы происходит линейное по плотности и изотропное в обратном пространстве сужение запрещенной зоны (на примере теллура) в хорошем количественном соответствии с неподтвержденными до этого момента последними теоретическими предсказаниями

2) по мере роста плотности плазмы и сужения запрещенной зоны сингулярность процесса фотоионизации не развивается, поскольку коэффициент трехчастичной оже-рекомбинации возрастает нелинейно обратно пропорционально ширине прямой запрещенной зоны, а скорость противоборствующей фотоионизации оже-рекомбинации – еще быстрее, что стабилизирует плотность плазмы и ширину зонной щели. Наконец, экспериментально продемонстрировано, что такая стабилизация вызывает рост температуры плазмы и связанной с ней эмиссии заряженных частиц.

В пятой главе рассматривается следующая стадия релаксации в ходе абляции ультракороткими лазерными импульсами – перенос энергии из электронной подсистемы в решетку. Автором разработана методика измерения времен электрон-фононной термализации по положению минимума пороговой плотности энергии для одноимпульсной абляции материалов в зависимости от длительности УКИ накачки в фемто-пикосекундном диапазоне, с помощью которой оцениваются соответствующие значения для «хороших» металлов с теоретически предсказанными большими временами релаксации – алюминия, серебра и меди, а также кремния. В обосновании принципа измерений отмечается, что в отсутствие артефактов промежуточный минимум порога абляции имеет место, поскольку величина характерного времени электрон-фононной термализации разделяет

стадии электронной и решеточной динамики. В стадии электронной динамики для более высоких электронных температур (и их градиентов) растут транспортные и эмиссионные (излучение, заряженные частицы) потери, а также могут существенно отличаться оптические постоянные промежуточного состояния вещества, что показано путем время-разрешенного зондирования в предыдущих и последующих главах. Дополнительный анализ характерных $1/e$ -радиусов абляции для пленок аморфного кремния с линейным фотопоглощением в видимом диапазоне позволил с помощью данной методики впервые установить величину коэффициента амбиполярной диффузии плазмы в абляционном режиме.

В шестой главе описана разработанная автором акусто-модуляционная рефлектометрическая методика с временным разрешением для исследования плавления поверхностного слоя материалов и динамического измерения глубины плавления с учетом эффекта абляции. Она основана на измерении периода динамических осцилляций отражения пробных УФ (400 нм, характерная глубина зондирования ≈ 10 нм) ультракоротких импульсов от поверхности материалов, возбужденной ИК (800 нм, характерная глубина возбуждения ~ 100 нм) ультракороткими импульсами. Осцилляции отражения связаны с реверберациями акустической волны сжатия/разгрузки различной природы (фазовое превращение, нагревание) в приповерхностном слое расплава. Проведены измерения для кремния, арсенида галлия и графита, в результате впервые экспериментально установлен факт движения фронта плавления от поверхности, измерены максимальные скорости его движения и глубины проплавления в зависимости от плотности энергии излучения. Для графита установлена ранее неизвестная величина продольной скорости звука в расплаве – 1.6 км/с.

В седьмой главе рассматриваются заключительные стадии абляции ультракороткими лазерными импульсами, связанные непосредственно с удалением материалов – субкритическая откольная абляция и около/закритическая фрагментационная абляция («фазовый взрыв») поверхности материалов под действием УКИ. Исследуются их ключевые механизмы и базовые параметры – характерные глубины кратеров, температуры, давления и скорости разлета вещества. На основании экспериментальных наблюдений наномасштабных следов вскипания при подпороговых условиях, а также субнаносекундных временных масштабов такого вскипания сделан вывод об

отрыве пленки расплава в результате формирования подповерхностной паровой или пенной полости в результате слияния множественных нанопузырей.

Для исследования гидродинамического разлета непрозрачного и сильно рассеивающего закритического флюида при фрагментационной абляции разработана методика бесконтактной широкополосной ультразвуковой диагностики. Она позволяет установить для различных материалов в рамках модели точечного взрыва начальные давления и скорости расширения абляционного факела в воздухе в зависимости от параметров лазерного воздействия и связать их с параметрами выходных волн давления на тыльной стороне мишени. Впервые экспериментально продемонстрированы сверхэластический режим распространения ударной волны в мишени титана при давлениях выше 10 ГПа и сильно диссипативный режим ее распространения при меньших давлениях. Предложено использовать эту методику для бесконтактной количественной диагностики таких явлений в конденсированной фазе или контроля режимов улучшения прочностных характеристик при обработке УКИ.

В заключении сформулированы основные выводы и результаты, полученные в диссертационной работе.

Научные положения, выдвинутые на защиту на основе анализа результатов проведенных информативных и взаимодополняющих исследований, представляются достаточно **обоснованными**. Основные результаты этих исследований, полученные с помощью коммерческого лазерного оборудования, разнопланового сертифицированного аналитического оборудования и оригинальных методик, представляются **достоверными** и успешно доложены на многих национальных и международных конференциях. Основные результаты диссертационной работы опубликованы в 54 печатных работах (из них – две главы в монографиях и 52 работы в научных реферируемых журналах, индексируемых в наукометрической базе данных Web of Science), а также в 25 публикациях по докладам на международных конференциях.

Новизна результатов диссертационной работы Кудряшова Сергея Ивановича заключается в: 1) выборе адекватной общей цели работы комплекса взаимодополняющих экспериментальных оптических, электрофизических, акустических, оптико- и электронно-микроскопических методов и разработке

соответствующих методик измерений (регистрации электронной и плазменной эмиссии, параметров электронной перенормировки ширины запрещенной зоны, времени электрон-фононной термализации, скорости движения фронта плавления и глубины расплава, характерных времен начала откольной абляции, начального давления и скорости разлета закритического флюида); 2) последовательном, мультимасштабном (временные рамки – 0.1-1000 пс) и разноплановом исследовании различных аспектов базовых стадий фемтосекундной лазерной абляции и выявлении основных определяющих процессов для каждой из них с измерением ключевых параметров таких процессов; 3) построении внутренне согласованной, целостной феноменологической картины фемтосекундной лазерной абляции поверхности материалов, включающей на разных стадиях различные фундаментальные механизмы удаления вещества (эмиссия плазмы, откол расплава и гидродинамический разлет закритического флюида).

По диссертационной работе можно сделать следующие замечания:

- 1) Текст работы выглядит довольно громоздким, много излишне длинных предложений, что затрудняет их осмысление, встречаются ненужные повторы текста (например, на стр. 5 - стр. 17) и даже рисунков (рис. 5.2 и 7.11).
- 2) Работа посвящена исследованию абляции, однако описание ее режимов, приведенное в 1.4., недостаточно для четкого понимания их особенностей, хотя содержит все необходимые ссылки. Следовало бы более подробно и популярно остановиться на этом во введении, пояснив такие, например, понятия как «закритический флюид», «фазовый взрыв», «фрагментационная абляция» и др., что значительно бы улучшило восприятие дальнейшего текста.
- 3) В тексте достаточно много опечаток и синтаксических ошибок. Не очень воспринимается термин «заряжение поверхности» (почему не заряд?).
- 4) В пп.4 и 5 на стр. 11 следовало бы указать конкретные величины временного разрешения.
- 5) Ссылка на «единственную пока работу» указана как 7 на стр.5, но как 6 на стр.17.

- 6) Не очень понятны выражения «резко замедляет рост плотности электрон-дырочной плазмы в пользу ее нагрева и эмиссии электрон-ионной плазмы» (стр.13), «лазерно-плазменная абляция поверхности незначительна по сравнению с шириной поглощающего слоя» (стр. 85), «Соответствующие внутренние напряжения..., связаны с неосциллирующими («замороженными») КР-активными центрозонными (волновое число $q = 0$) оптическими фононами [263], даже если соответствующие физические механизмы «заморозки» до сих пор не установлены». (стр. 117). Не определено понятие «контраст мишеней» (стр. 23 и далее).
- 7) Противоречиво утверждение о проявлении процессов N -фотонного фотовозбуждения материалов «в размерах характерной области вложения энергии (обычно больше размеров характерной области фокусировки) за счет обострения размеров фокусировки гауссовского пучка» (стр. 137).
- 8) Сильно затрудняет обзор диссертации отсутствие в подписях ко многим рисункам (рис. 3.13, 3.10, 3.7, 3.5, 3.3, 3.2, 4.19, 4.17, 4.14, 4.9 - 4.11, 4.6, 4.4, 6.21, 6.17, 6.16, 6.15, 6.9 - 6.13, 6.4, 6.3, 6.2 - 6.5, 7.29 - 7.32, 7.24 - 7.27, 7.20, 7.9, 7.6, 7.5, 7.3, 7.2) указаний на материал, с которым проводились исследования. То же замечание можно сделать по поводу рис. 1-3, 6, 8, 8 автореферата. На рис. 1.2 нет масштаба по вертикальной оси, на рис. 6.4 – нет единиц измерения по вертикальной оси. На рис. 4.17 а) неясно, к чему относятся темные квадраты и кружки, а на рис. б) нет упомянутой в подписи пунктирной линии.

Отмеченные недостатки не являются принципиальными и не снижают общей положительной оценки диссертации.

Автореферат достоверно отражает содержание диссертации работы.

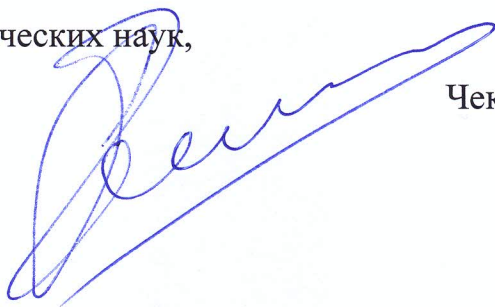
Диссертационная работа «Взаимодействие фемтосекундных лазерных импульсов в режиме абляции с металлами и полупроводниками, обладающими сильным межзонным поглощением» полностью **удовлетворяет всем требованиям** «Положения о присуждении ученых степеней», утвержденного постановлением

Правительства Российской Федерации № 842 от 24 сентября 2013 года, а её автор – Кудряшов Сергей Иванович – заслуживает присуждения ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.21 – лазерная физика.

Официальный оппонент:

Главный научный сотрудник, и.о. заведующего Лабораторией ультрабыстрых процессов Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института спектроскопии Российской академии наук (ИСАН)

доктор физико-математических наук,
профессор



Чекалин Сергей Васильевич

«23» сентября 2019 г.

Почтовый адрес: 108840 г. Москва, г. Троицк, ул. Физическая, 5

Телефон: 8 (495) 851-02-37

Email: chekalin@isan.troitsk.ru

Подпись главного научного сотрудника ИСАН Чекалина С.В. заверяю.

Учёный секретарь ИСАН,

кандидат физико-математических наук Перминов Евгений Борисович



Список основных публикаций С.В. Чекалина по теме защищаемой диссертации в рецензируемых научных изданиях за последние 5 лет:

1. **Чекалин, С. В.**, Компанец, В. О., Дормидонов, А. Е., & Кандидов, В. П. (2019). Динамика световых пульс в однородных диэлектриках. Успехи физических наук, 189(3).
2. Melnikov, A. A., Boldyrev, K. N., Selivanov, Y. G., Martovitskii, V. P., **Chekalin, S. V.**, & Ryabov, E. A. (2018). Coherent phonons in a Bi₂Se₃ film generated by an intense single-cycle THz pulse. *Physical Review B*, 97(21), 214304.
3. Laptev, V. B., Kompanets, V. O., Pigulsky, S. V., Makarov, A. A., Mishakov, G. V., Serebryakov, D. V., **Chekalin, S. V.**, & Ryabov, E. A. (2019). IVR Dynamics of Vibrational Levels of the ν_1 Mode in (CF₃)₂C=C=O Molecules Excited by Resonant IR Femtosecond Radiation. *The Journal of Physical Chemistry A*, 123(4), 771-779.
4. **Chekalin, S.V.**, Dormidonov, A.E., Kompanets, V.O., Zaloznaya, E.D., Kandidov, V.P. (2019). Light bullet supercontinuum, *Journal of the Optical Society of America B: Optical Physics* 36(2), с. A43-A53.
5. Melnikov, A.A., **Chekalin, S.V.**, Ryabov, E.A. (2018) Ultrafast Dynamics of Electrons and Crystal Lattice in Bismuth Selenide *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics* 82(12), с. 1502-1505
6. Mironov, B.N., Aseev, S.A., Ishchenko, A.A., **Chekalin, S.V.**, Ryabov, E.A. (2018). Modification of a graphene - Copper substrate in vacuum by femtosecond laser radiation *Quantum Electronics* 48 (2), 145.
7. Aseyev, S., Mironov, B., Andreyev, S., ... **Chekalin, S.**, Ryabov, E. (2017). Study of ultrafast processes in matter by means of time-resolved electron diffraction and microscopy, *EPJ Web of Conferences* 161,01002.
8. Mironov, B.N., Kompanets, V.O., Aseev, S.A., ..., **Chekalin, S.V.**, Ryabov, E.A. (2017). Observation of coherent optical phonons excited by femtosecond laser radiation in Sb films by ultrafast electron diffraction method, *Journal of Experimental and Theoretical Physics* 124(3), с. 422-428.
9. Andreev, S.V., Aseev, S.A., Bagratashvili, V.N., ... **Chekalin, S.V.**, Shashkov, E.V., Ryabov, E.A. (2017). Ultrafast transmission electron microscope for studying the dynamics of the processes induced by femtosecond laser beams *Quantum Electronics* 47(2), с. 116-122.