

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физический институт им. П.Н. Лебедева
Российской академии наук

На правах рукописи

Смирнов Никита Александрович

**АБЛЯЦИОННЫЕ КРАТЕРЫ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ ФЕМТО- И
ПИКОСЕКУНДНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ НА ПОВЕРХНОСТЬ
ЗОЛОТА И КРЕМНИЯ В ВОЗДУШНОЙ И ВОДНОЙ СРЕДЕ**

Специальность 1.3.19 – лазерная физика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва – 2022

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физическом институте им. П.Н. Лебедева Российской академии наук (ФИАН).

Научный руководитель: Доктор физико-математических наук, доцент **Кудряшов Сергей Иванович (ФИАН)**

Официальные оппоненты: Доктор физико-математических наук, **Першин Сергей Михайлович**, главный научный сотрудник лаборатории лазерной спектроскопии Института общей физики им. А.М. Прохорова РАН, г. Москва

Кандидат физико-математических наук **Ашитков Сергей Игоревич**, старший научный сотрудник лаборатории лазерного воздействия Отдела физики экстремальных состояний Объединенного института высоких температур РАН, г. Москва

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования **Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова**

Защита состоится «14» ноября 2022 года в 10:00 на заседании диссертационного совета 24.1.262.01 на базе Физического института им. П. Н. Лебедева РАН по адресу: 119991, Москва, Ленинский проспект, 53.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ФИАН, а также на сайте института <http://www.lebedev.ru>.

Автореферат разослан «___» _____ 2022 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета 24.1.262.01,
доктор физико-математических наук

А. С. Золотко

1. Общая характеристика работы

Актуальность темы исследования

Лазерные ультракороткие импульсы (УКИ) являются эффективным инструментом для обработки широкого круга материалов, таких как полупроводники, диэлектрики, полимеры, керамика, металлы. С появлением мощных фемтосекундных лазерных установок (20-100 Вт) их использование становится все более актуальным для применения на производстве. Это связано с тем, что скорость (эффективность) лазерной обработки материала для таких систем стала сопоставима с механическими методами (фрезерование, сверление и др.). Можно выделить несколько важных отличительных особенностей обработки лазерными УКИ: лазерные методы обладают субмикронной точностью, не повреждают объем вещества, есть возможность обработки тонкостенных деталей с прецизионным удалением слоя материала (до 100 нм).

Актуальность и перспективность применения для обработки поверхности именно лазерных УКИ связана со следующими преимуществами [1,2]:

1) Энергетическая эффективность (г/Дж, $\text{мкм}^3/\text{Дж}$) абляционного удаления материалов (в первую очередь – металлов) для УКИ оказывается почти в 10 раз выше, чем в случае более длинных – (суб)наносекундных лазерных импульсов из-за экранирующего действия лазерной эрозионной плазмы и увеличения зоны термического воздействия (потери энергии на нагрев материала) [3].

2) Меньшие тепловые повреждения материала.

3) Меньшее загрязнение поверхности мишени продуктами абляции.

4) Возможность получать новые виды модификации поверхности (периодические поверхностные структуры на поверхности материалов и др.).

Несмотря на большое количество работ в данной области, до сих пор нет детального понимания и описания процессов, происходящих при взаимодействии лазерных УКИ с веществом. Это связано с тем, что абляция происходит в очень малых временных и пространственных масштабах и сопровождается сложными физическими процессами [4], к которым можно отнести: неравновесное распределение энергии электронов на фемтосекундных временных масштабах,

перенос энергии электронов в решетку, теплопроводность, акустическую разгрузку и удаление материала, транспорт энергии [4].

Так транспорт энергии в кристаллическом кремнии обеспечивается амбиполярной диффузией D с коэффициентом, нелинейно зависящим от плотности электрон-дырочной плазмы (ЭДП) в отличие от металлических мишеней, где концентрация носителей практически постоянна. При плотностях плазмы 10^{19} - 10^{20} см^{-3} коэффициент амбиполярной диффузии равен $D \sim 10$ – 10^3 $\text{см}^2/\text{с}$ [5]. Для более высоких плотностей 10^{21} – 10^{22} см^{-3} , которые достигаются при фемтосекундном воздействии в абляционном режиме, значения для коэффициента амбиполярной диффузии в кристаллическом кремнии неизвестны. Ранее в работе по абляции тонких аморфных кремниевых пленок из анализа латерального размера абляционных пятен было показано, что коэффициент амбиполярной диффузии при абляционной плотности плазмы 10^{22} см^{-3} составляет $(1-2) \times 10^3$ $\text{см}^2/\text{с}$ [6]. Также в ряде работ были представлены результаты по расширению электрон-дырочной плазмы в кремнии при облучении пико-наносекундными лазерными импульсами. В данных работах докладывается о скоростях расширения ЭДП, приближающихся $\sim 10^5$ - 10^6 $\text{см}/\text{с}$ [7]. При этом данная скорость рассматривается уже на наносекундных временах, когда температура плазмы значительно снизилась за счет электрон-фононного взаимодействия. Динамика плазмы на субпикосекундных временах подробно не изучена.

Особый интерес для исследования представляет диапазон длительностей лазерного излучения в области времени электрон-фононной релаксации, которое существенно влияет на процесс распределения энергии при абляции через транспорт горячих носителей [4]. Обычно время электрон-фононной релаксации зависит от материала и находится в диапазоне 0.1-50 пс [8]. Именно в данном промежутке длительностей лазерного излучения может происходить смена механизмов абляции, что будет существенно влиять на процесс абляции.

Существует значительное количество работ, в которых рассматривается оптимизация параметров лазерных систем для абляции (длина волны, длительность лазерного импульса, фокусирующая оптика, частота следования лазерных импульсов, параметры сканирования образца). При этом для лазерной

абляции также большое значение имеет не только выбор параметров лазера, но и выбор среды, в которой происходит лазерная обработка поверхности. Так, например, для многих технологических процессов большое распространение получила абляция УКИ поверхности материалов в жидких средах, у которой есть ряд преимуществ по сравнению с абляцией в газах: более эффективный теплоотвод, благодаря которому поверхность лучше охлаждается, и, следовательно, уменьшаются вызванные лазером остаточные тепловые повреждения; меньшее загрязнение поверхности образца продуктами абляции [9]. Также абляция УКИ в жидкости является эффективным и экологически чистым способом получения коллоидных растворов наночастиц разного рода материалов.

При этом стоит отметить, что при взаимодействии мощных лазерных УКИ с прозрачными средами, - например, водой, возникают разные нелинейные оптические эффекты (самофокусировка и результирующая филаментация). Явление самофокусировки является пороговым эффектом и зависит как от параметров лазерного излучения (длина волны, длительность лазерного импульса), так и от среды, в которой происходит распространение лазерного излучения [10]. Для воды порог самофокусировки значительно ниже чем для воздушной среды (для воды (1030 нм) 2-6 МВт, для воздуха (1030 нм) 2-5 ГВт [10,11]) и достигается уже при незначительных значениях энергии в импульсе (~1 мкДж (для 0.3 пс). Факт влияния филаментации на процесс абляции известен. Например, при обработке в режиме филаментации диэлектриков, прозрачных на длине волны лазерного излучения, можно увеличить скорость и качество абляции. При абляции непрозрачных сред (металлы, полупроводники) эффект филаментации, возникающий в контактной с мишенью среде отмечался [12,13], но его вклад в процесс абляции количественно описан не был.

Цели и задачи диссертационной работы

Цель работы: Экспериментально охарактеризовать абляционные кратеры на поверхности золота и кремния и физические эффекты при воздействии ультракоротких лазерных импульсов в одноимпульсном режиме в воздушной и водной средах при варьировании длительности, плотности энергии и длины

волны лазерного излучения. В связи с этим были поставлены и решены следующие задачи:

1. Получить одноимпульсные кратеры на поверхности золотой и кремниевой мишени в воспроизводимых условиях (при одной фокусировке, поляризации излучения, фиксированных значениях энергии в импульсе) для разных длительностей лазерного излучения при абляции в воздушной и водной средах.

2. Произвести характеристику абляционного рельефа полученных кратеров

3. Исследовать эффект водной среды на процесс абляции.

4. Установить физические процессы, определяющие абляцию золотой и кремниевой мишени в воздушной и водной средах ультракороткими лазерными импульсами.

Научная новизна работы

1. Впервые обнаружен быстрый боковой перенос энергии плазмой с эффективной скоростью, равной $(0.2-0.4) \times 10^6$ м/с, при анализе размеров кратеров в мишени кремния, полученных ультракоротким импульсами варьируемой длительности (0.3-10 пс). Перенос происходит на временах жизни электрон-дырочной плазмы, которая ограничена электрон-фононной термализацией ~ 2 пс.

2. Произведена количественная оценка влияния явления самофокусировки на процесс выноса вещества с поверхности материалов (золото, кристаллический кремний) под воздействием ультракоротких лазерных импульсов варьируемой длительности (0.3-10 пс) для двух длин волн (515 нм и 1030 нм) в водной среде при жесткой фокусировке лазерного излучения ($NA=0.25-0.65$). Обнаружено, что глубина кратеров при достижении критической мощности самофокусировки снижается в 2-3 раза.

3. Впервые произведены экспериментальные исследования одноимпульсной абляции поверхности золотой мишени для варьируемой длительности лазерного импульса (0.3-10 пс) на двух длинах волн (515 нм -1030 нм) при воздействии жестко сфокусированных лазерных импульсов ($NA=0.65$). Получены значения глубин кратеров в широком диапазоне используемых плотностей энергии. Произведен анализ эффективности абляции в зависимости от длительности

лазерного излучения и используемой контактной среды (воздух, дистиллированная вода).

Теоретическая и практическая значимость

Проведенные экспериментальные исследования представляют практический интерес в области прецизионной микрообработки поверхности материалов. Представлены систематические результаты, позволяющие оптимизировать параметры лазерной системы для обработки поверхности в зависимости от контактной среды, в которой будет происходить абляция.

Продемонстрировано, что в воздухе при фиксированной плотности энергии лазерного излучения в одноимпульсном режиме, эффективность абляции возрастает (до 3 раз) с уменьшением длительности УКИ. В прозрачных жидкостях (дистиллированной воде), наоборот, с уменьшением длительности УКИ эффективность абляции может значительно снизиться (до 5 раз при фокусировке $NA \geq 0.25$) при достижении пороговой мощности самофокусировки.

Экспериментально измеренные эффективные скорости переноса энергии (при плотности электрон-дырочной плазмы $\sim 10^{22} \text{ см}^{-3}$) и время электрон-фононной термализации в кремнии ($\approx 2 \text{ пс}$), которые являются одними из ключевых параметров при численном моделировании взаимодействия ультракоротких лазерных импульсов с данным материалом.

Положения, выносимые на защиту

1. Глубина кратеров при одноимпульсной абляции мишеней золота и кристаллического кремния жестко сфокусированными (суб)пикосекундными лазерными импульсами ближнего ИК- и видимого диапазона снижается при увеличении длительности лазерного импульса при абляции в воздухе и превышении критической мощности самофокусировки при абляции в воде.

2. При одноимпульсной абляции поверхности кристаллического кремния в воздушной среде жестко сфокусированными лазерными импульсами ближнего ИК-диапазона, варьируемой (суб)пикосекундной длительности происходит быстрый боковой перенос энергии на временах электрон-фононной

релаксации ≈ 2 пс с эффективной скоростью частично вырожденной электрон-дырочной плазмы в диапазоне $(0.2-0.4) \times 10^6$ м/с.

3. При одноимпульсной абляции поверхности кристаллического кремния в воздушной среде жестко сфокусированными ультракороткими импульсами ближнего ИК-диапазона ниже пороговой величины плотности энергии 5 Дж/см^2 максимальная глубина кратера не зависит от длительности импульсов, а при более высоких значениях плотности энергии с ростом длительности импульса уменьшается до постоянных значений.

Степень достоверности

Достоверность результатов, полученных в диссертационной работе была подтверждена воспроизводимостью экспериментальных данных, полученных на сертифицированном оборудовании, и их согласием с выводами теоретических моделей.

Апробация работы и публикации

Результаты работы представлены на следующих международных конференциях: «Современные проблемы физики и технологий», Москва, Россия, 2018г; «The IV International Conference on Laser&Plasma researches and technologies», (LaPlas-2018), Москва, Россия, 2018г; «11th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications», (ICPEPA 11), Вильнюс, Литва, 2018г; «International Conference on Ultrafast Optical Science –UltrafastLight» Москва, Россия, 2019г; «International Conference on Ultrafast Optical Science – UltrafastLight», Москва, Россия, 2020г; «International Conference on Ultrafast Optical Science –UltrafastLight» Москва, Россия, 2021г.

Результаты, полученные в диссертационной работе, были опубликованы в 6 научных статьях в рецензируемых научных журналах, индексируемых в базах данных Web of Science и Scopus и в 6 материалах научных конференций. Список публикаций приведен на стр. 22-24.

Личный вклад автора

Цели диссертационной работы были сформулированы руководителем д. ф.-м. н. Кудряшовым Сергеем Ивановичем и обсуждались с автором работы. Все результаты, представленные в диссертационной работе, были получены автором лично или при его непосредственном участии.

В публикации [Nastulyavichus A., Smirnov N., Kudryashov S. Quantitative evaluation of LAL productivity of colloidal nanomaterials: which laser pulse width is more productive, ergonomic and economic? //Chinese Physics B. – 2022. – Т. 31. – №. 7. – С. 077803 (published online 17 February 2022)] автору принадлежат результаты, относящиеся к абляции золотой мишени только жестко сфокусированными лазерными импульсами.

Структура и объем диссертационной работы

Диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, заключения и списка цитированной литературы из 157 наименований. Объем диссертации составляет 118 страниц, включая 61 рисунок и 1 таблицу.

2. Основное содержание работы

Во введении приведено обоснование актуальности выбранной темы, определены цели и задачи диссертационной работы, показана научная новизна и практическая значимость диссертационного исследования, сформулированы выносимые на защиту положения, представлены публикации по теме диссертации и конференции на которых производилась апробация работы.

В первой главе произведен обзор современного состояния в области диссертационного исследования. В первой части рассматриваются основные стадии поглощения лазерных ультракоротких импульсов (УКИ) в разного рода материалах (металлы, полупроводники диэлектрики) в рамках двухтемпературной модели (ДТМ). Рассмотрены механизмы выноса вещества с поверхности материала под действием лазерных УКИ и эффективность абляции

на воздухе в зависимости от длительности в пико-субпикосекундном диапазоне. Рассмотрены современные представления о нелинейном распространении лазерных УКИ в прозрачной среде. Рассмотрены особенности лазерной абляции в водной среде. Представлены обоснования использования режима одноимпульсной абляции для исследования: механизмов абляции, транспорта тепла, и влияния филаментации на абляцию в водной среде.

Во второй главе описана используемая в данных исследованиях лазерная установка и стенд по фемто-пикосекундной лазерной микрообработке поверхности материалов (рис.1).

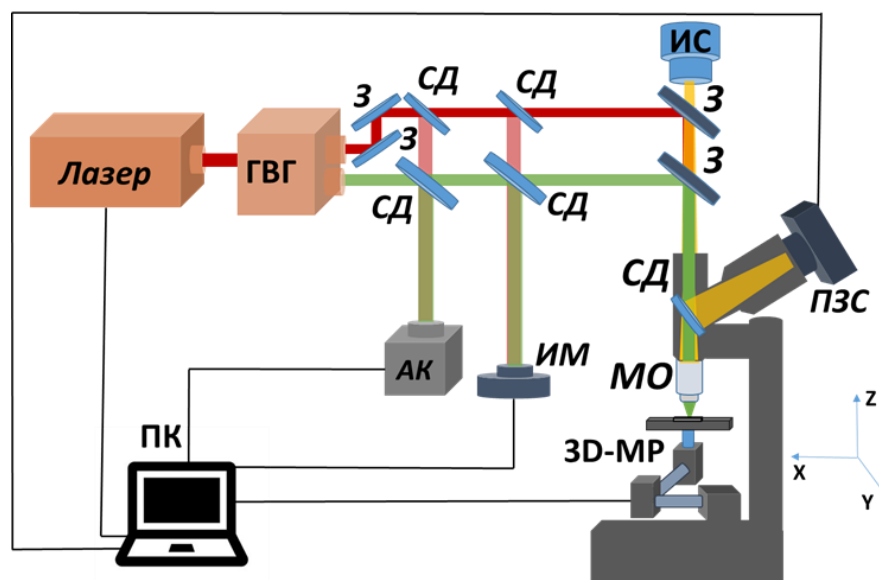


Рис.1. Схема стенда по фемто-пикосекундной лазерной микрообработке: ГВГ – генератор второй гармоники, СД – светоделитель, ИМ – измеритель мощности, АК – автокоррелятор, МО – микрообъектив, ИС – источник белого света, ПК – компьютер. З – зеркала с диэлектрическим покрытием. 3D-МР – трех координатная моторизированная платформа, ПЗС – камера для визуализации поверхности

Представлены методы характеристики полученных структур: сканирующая электронная микроскопия (СЭМ), сканирующая атомно-силовая микроскопия (АСМ) и спектроскопия комбинационного рассеяния света (КРС). Приведена

методика вычисления порогов абляции материала с использованием радиусов кратеров в зависимости от энергии в лазерном импульсе.

В третьей главе представлены результаты по абляции золотой мишени. Продемонстрирована морфология кратеров в зависимости от фокусировки лазерного излучения ($NA=0.25$ и 0.65 для длины волны 515 нм и $NA=0.65$ для 1030 нм), используемой воздушной или водной среды, длительности лазерного импульса ($0.3-10$ пс). Показано качественное различие в морфологии поверхности в зависимости от используемых параметров излучения и среды, в которой производилась абляция. На СЭМ снимках для лазерной абляции в воде для длительности импульса $0.3-10$ пс наблюдается снижение качества «отпечатка кратера», что предварительно связывается с возникновением нелинейных эффектов в жидкости.

Далее рассматривалась эффективность абляции. Сравнение производилось по максимальным глубинам при фиксированных значениях поверхностной плотности энергии (рис.2). Было продемонстрировано уменьшение глубины кратера с увеличением длительности лазерного излучения как для второй гармоники лазерного излучения (515 нм) (рис.2а), так и для первой гармоники (1030 нм) (рис.3а). Наблюдается уменьшение в два или три раза глубины кратеров при абляции в воздушной среде для длительности лазерного импульса > 1 пс, которое становится более выраженным при более высоких плотностях энергии. Это согласуется с предыдущими исследованиями для других материалов [14]. Есть несколько правдоподобных объяснений, связанных с уменьшением эффективности абляции: 1) более сильное нелинейное поглощение в переходных металлах при более высоких интенсивностях лазерного излучения, обеспечиваемое более короткими импульсами [14]; 2) сверхбыстрый перенос энергии горячими носителями в течение более коротких импульсов, до термализации электронов и решетки [15]; 3) частичная разгрузка внутреннего давления на уровне ГПа во время более длительных импульсов, которая уменьшает внутреннее давление сверхкритической жидкости; 4) нагрев ударной

волной [16] (с увеличением длительности лазерного импульса снижается амплитуда ударной волны уменьшая тем самым глубину кратера).

Предполагаемый механизм абляции золота на воздухе связан с гидродинамическим разлетом около- и закритического флюида кремния («фазовый взрыв»), что подтверждается как большой глубиной сформированных кратеров, так и оценкой соответствующей объемной плотности вложенной энергии $(1-R) F/Z_{abl} \sim 0.35 \times 20 \text{ Дж/см}^2 / 0.6 \text{ мкм} \approx 116 \text{ кДж/см}^3$ или $\approx 1200 \text{ кДж/моль}$ (Молярный объём золота $10.2 \text{ см}^3/\text{моль}$), что значительно выше чем энтальпия испарения золота ($\sim 340 \text{ кДж/моль}$).

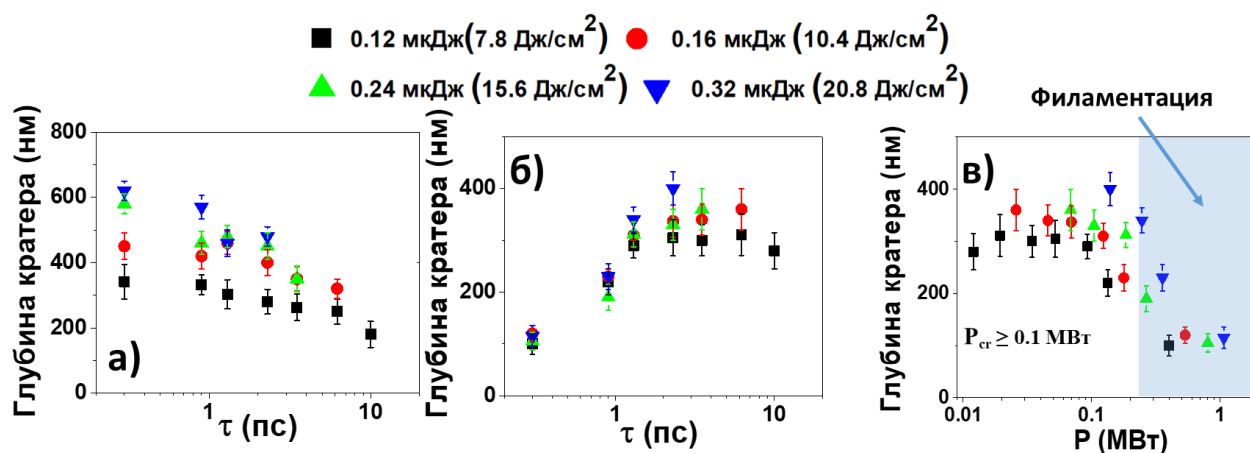


Рис.2. Глубины кратеров, полученные в золотой мишени для длины волны 515 нм при разной длительности лазерного импульса и фиксированных значениях плотности энергии. а) в воздухе, б) в воде, в) глубина кратеров в зависимости от пиковой мощности при абляции в воде.

При абляции в воде наблюдается обратная картина (рис.2б, рис3б): с ростом длительности глубина кратера растет. Глубина кратера для 0.3 пс практически не зависит от плотности энергии и составляет порядка 100 нм для 515 нм и 200 нм для 1030 нм. Для объяснения такого поведения глубины кратеров, зависимость глубины кратеров от длительности лазерного излучения была преобразована в график глубины кратеров от пиковой мощности (рис.2в,3в). На данных графиках мы видим, что падение глубины абляции начинается с пиковой мощности $\approx 0.15 \text{ МВт}$ для 515 нм и с $\approx 1 \text{ МВт}$ для 1030 нм, что не плохо соотносится с критическими

мощностями самофокусировки P_{cr} для данных длин волн (515 нм – $P_{cr}=0.4-1.2$ МВт, 1030 нм – $P_{cr}=2-5$ МВт [10]).

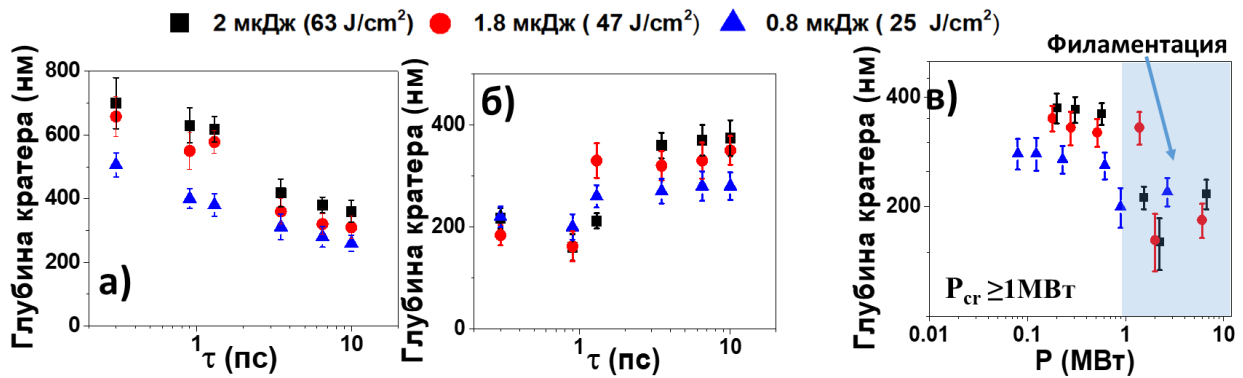


Рис.3. Глубины кратеров, полученные в золотой мишени для длины волны 1030 нм при разной длительности лазерного импульса и фиксированных значениях плотности энергии: а) в воздухе, б) в воде; в) глубина кратеров в зависимости от пиковой мощности при абляции в воде.

Для лазерного излучения с длиной волны 1030 нм при жесткой фокусировке ($NA=0.25$) производилась визуализация плазменного канала в воде без мишени, при разных значениях пиковой мощности излучения для длительности лазерного УКИ 0.3 пс (рис.4а).

На рис.4б представлен график смещения центра плазменного канала от пиковой мощности в лазерном импульсе. Начало резкого смещения происходит в районе 3.5-5 МВт. Данный сдвиг можно интерпретировать как превышение над критической мощностью самофокусировки, что хорошо согласуется с литературными значениями критической мощности в воде для соответствующей длины волны. Другим возможным механизмом возникновения плазменного канала является лазерный пробой жидкости, который является пороговым эффектом с фиксированным пороговым значением интенсивности пробоя. Из экспериментальных данных для известного гауссового распределения интенсивности излучения в пучке перед фокусом рассчитано предполагаемое положение пробоя для диапазона использованных значений энергии импульса. Положение точки оптического пробоя оказывается существенно ближе к

фокальной плоскости и поэтому можно говорить об формировании плазменного канала в результате самофокусировки и филаментации.

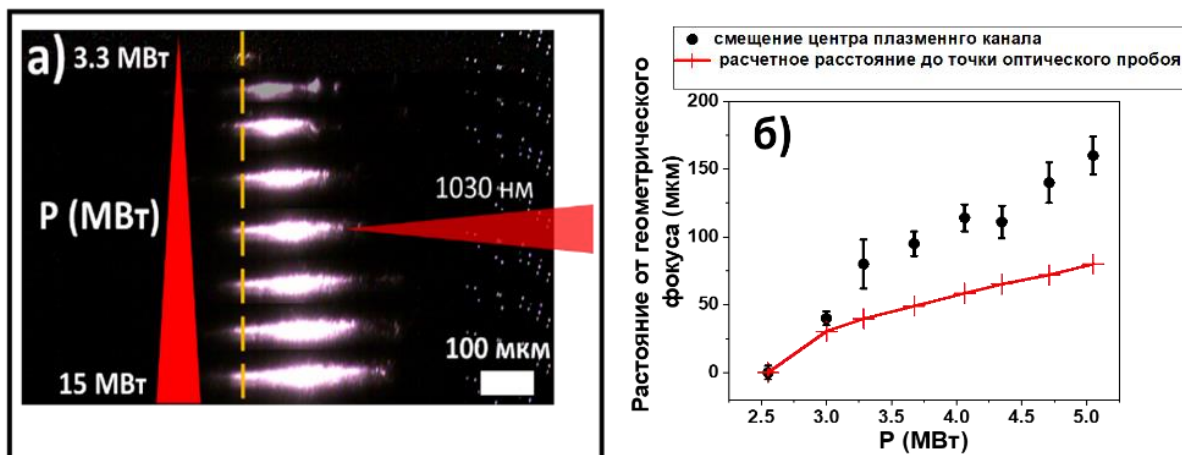


Рис. 4. а) Снимки плазменных каналов в воде для варьируемой пиковой мощности УКИ длительностью 0.3 пс; б) смещение центра плазменного канала в зависимости от пиковой мощности в УКИ (точки) и расчетное расстояние до точки оптического пробоя (линия).

Четвертая глава посвящена одноимпульсной абляции кремниевой мишени на длинах волн первой и второй гармоники через объектив с числовой апертурой $NA=0.25$. Была произведена СЭМ визуализация морфологии кратеров. Выявлены следующие особенности: при абляции в воздушной среде на бортиках кратера образовывается коронообразная структура, связанная с неустойчивостью Рэлея-Плато, которая с увеличением длительности проявляется сильнее. Для абляции в воде для длительностей лазерного УКИ 0.3-0.9 пс появляются периодические кольцеобразные субмикронные структуры, которые при других условиях в нашем эксперименте не наблюдались. Их появление можно связать с ударными волнами, которые в воде проявляют себя сильнее, чем на воздухе, а также капиллярными волнами расплава кремния.

Для кремния также были произведены измерения эффективной скорости расширения электрон-дырочной плазмы, которое вычислялось через изменение радиусов кратера в зависимости от длительности лазерных УКИ и энергии в импульсе. При анализе размеров кратеров, полученных при абляции на воздухе,

был обнаружен аномальный рост размера кратера при плотностях энергии менее 5 Дж/см^2 . Этот эффект наиболее выражен для коротких длительностей и в конечном итоге с увеличением длительности приходит в соответствие с геометрической фокусировкой. Данный эффект связывается с расширением электрон - дырочной плазмы на субпикосекундных временах, которая будет быстро рекомбинировать в процессе расширения и передавать энергию ионной подсистеме на временах электрон – фононной релаксации τ_{ep} .

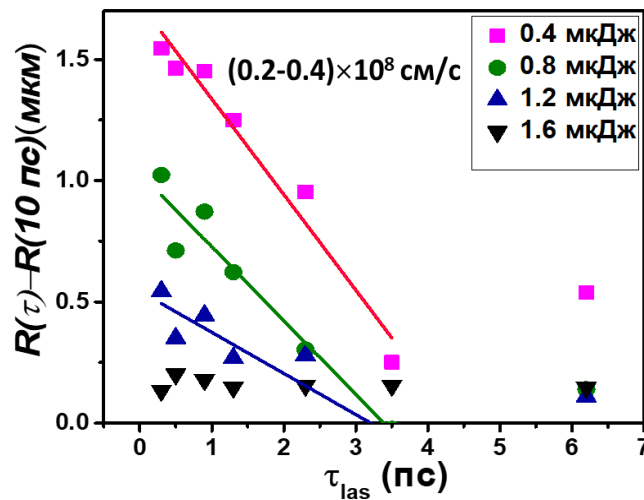


Рис.5. Зависимость $(R(\tau) - R(10 \text{ пс}))$ от τ при различных энергиях падающего импульса и их линейная аппроксимация, показывающая эффективную скорость расширения плазмы

Для расчета эффективной скорости расширения электрон дырочной плазмы были построены зависимости (рис.5) $(R(\tau) - R(10 \text{ пс})) - \tau$, а затем из аппроксимации были получены значения скорости расширения электрон-дырочной плазмы $v = \Delta R / \tau$, где $\Delta R = R(\tau) - R(10 \text{ пс})$, $R(10 \text{ пс})$ – радиус кратера при геометрической фокусировке для данного объектива ($\sim 3.2 \text{ мкм}$), v – скорость расширения плазмы, τ – длительность импульса.

Транспорт энергии можно рассматривать в рамках расширения плазмы с эффективной скоростью, близкой к скорости Ферми. Энергия ферми и скорость электронов на уровне Ферми рассчитывались по формулам:

$$E_F = \frac{\hbar^2}{2m} (3\pi^2 n/6)^{2/3} \quad (1)$$

$$V_F = \sqrt{\frac{2E_F}{m}} \quad (2)$$

Из линейной аппроксимации графика (рис.5) были получены оценки эффективной скорости расширения ЭДП, которая равна $(0.2-0.4) \times 10^8$ см/с. При подставлении в формулы (1,2) были получены соответствующие оценки энергии Ферми: 0.08-0.45 эВ и концентрации носителей: n $(0.63-8.2) \times 10^{21}$ см⁻³, значения являются грубой минимальной оценкой, поскольку не учитывается возможность сильной электронной перенормировки зонного спектра при высокоинтенсивном лазерном возбуждении, а также производится усреднение скорости расширения по длительности.

Также такое поведение размеров кратера можно связать с латеральным переносом энергии в масштабе времени амбиполярной диффузии электрон-дырочной плазмы и сопутствующей электрон-фононной термализации.

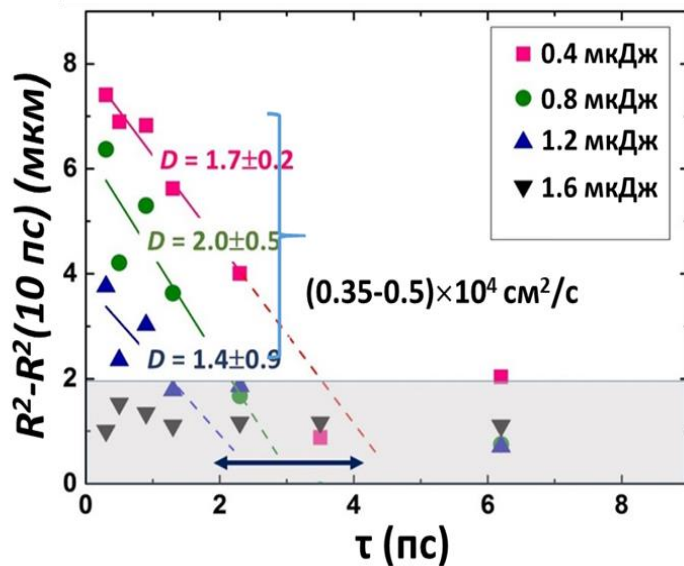


Рис.6. Зависимости $R^2(\tau) - R^2(10 \text{ пс})$ от τ при различных энергиях падающего импульса и их линейная аппроксимация, показывающая наклон D и смещение $\tau_{\text{ер}}$, показанные в виде диапазона горизонтальной стрелкой.

Для оценки коэффициента амбиполярной диффузии были построены зависимости в виде $R^2(\tau) - R^2(10 \text{ пс}) - \tau$, (рис.6), линейная аппроксимация которых

с помощью выражения $R^2(\tau) - R^2(10 \text{ пс}) \approx 4D(\tau_{ep} - \tau)$, дает нам значения коэффициента амбиполярной диффузии $(0.35-0.5) \times 10^4 \text{ см}^2/\text{с}$ для абляционной плотности плазмы $\sim 10^{22} \text{ см}^{-3}$. Из аппроксимации также получено время термализации энергии в решетке $\tau_{ep} \approx 2-4 \text{ пс}$.

Для кремния были получены значения порогов абляции от длительности лазерного излучения. Зависимости имеют одинаковую динамику для обеих используемых длин волн, а также для них наблюдается минимум значений пороговой плотности энергии в районе $\approx 2 \text{ пс}$, связанный, как и выше с достижением времени электрон-фононной термализации.

Рассмотрим эффективность абляции кремниевой мишени в зависимости от энергии в импульсе, длительности лазерного УКИ и среды, в которой производилась абляция. Сравнение эффективности производилось по максимальным глубинам при фиксированных значениях лазерной плотности энергии (рис.7).

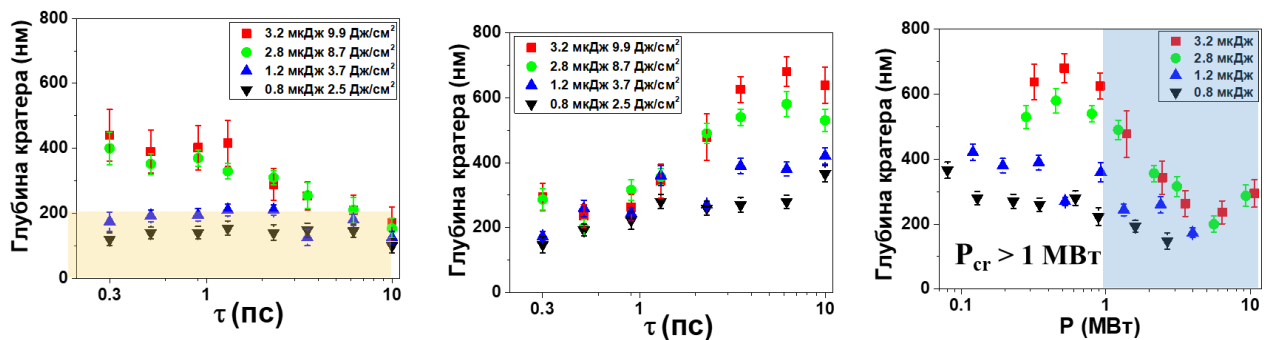


Рис.7. Глубины кратеров, полученные в кремниевой мишени для длины волны 1030 нм при разной длительности лазерного импульса и фиксированных значениях плотности энергии: а) в воздухе, б) в воде; в) глубина кратеров в зависимости от пиковой мощности при абляции в воде.

Было продемонстрировано уменьшение глубины кратера в два раза с увеличением длительности лазерного излучения для первой гармоники (1030 нм) (рис7а) и плотностей энергии $> 8 \text{ Дж}/\text{см}^2$. Для плотностей энергии менее $5 \text{ Дж}/\text{см}^2$ было обнаружено, что глубины кратеров от длительности лазерного импульса имеют постоянную величину в районе $\approx 100-150 \text{ нм}$. Можно предположить, что

для лазерных импульсов длительностью 10 пс имеет место только режим откола, что согласуется с предыдущими наблюдениями для железа [2], из-за непрерывной акустической релаксации внутреннего теплового давления в расплавленном кремнии во время лазерных импульсов, что приводит к частичному или полному подавлению механизма фазового взрыва [2].

При абляции кремния в воде наблюдается рост глубины кратера с увеличением длительности (рис.7б). Для объяснения такого поведения глубины абляции, зависимость глубины абляции от длительности лазерного излучения была преобразована в график глубины абляции от пиковой мощности (рис.7в). На данном графике мы видим, что резкий рост глубины абляции начинается при снижении пиковой мощности лазерного излучения до ~ 1 МВт. Полученные значения хорошо соотносятся с критической мощностью самофокусировки в воде для данной длины волны (2-5 МВт для 1030 нм), а также совпадают с данными, полученными при абляции золотой мишени.

Для абляции кремниевой мишени на длине волны 515 нм мы наблюдали ту же тенденцию, что и для длины волны 1030 нм. Глубина кратеров при абляции в воде начинала расти с пиковой мощности $\sim 0.1-0.4$ МВт, что хорошо соотносится с критической мощностью для данной длины волны и полученными значениями при абляции золотой мишени.

Далее в **этой главе** рассматривалась роль протяженного филаментационного фокуса при абляции поверхности кремния в водной среде ультракороткими лазерными импульсами. В качестве мишени использовался кремний. Абляция производилась на длине волны 1030 нм при длительностях УКИ 0.3 и 10 пс в водной среде в зависимости от положения линейного фокуса относительно поверхности мишени для объектива с $NA=0.25$ (рис.8а). На сканирующем электронном микроскопе произведена визуализация абляционного рельефа поверхности в зависимости от положения линейного фокуса относительно поверхности мишени (рис.8б). Были получены значения максимальной глубины и объема кратера в зависимости от положения геометрического фокуса. При абляции лазерными УКИ длительностью 0.3 пс глубины и объемы полученных кратеров значительно меньше, чем для длительности 10 пс (рис.9).

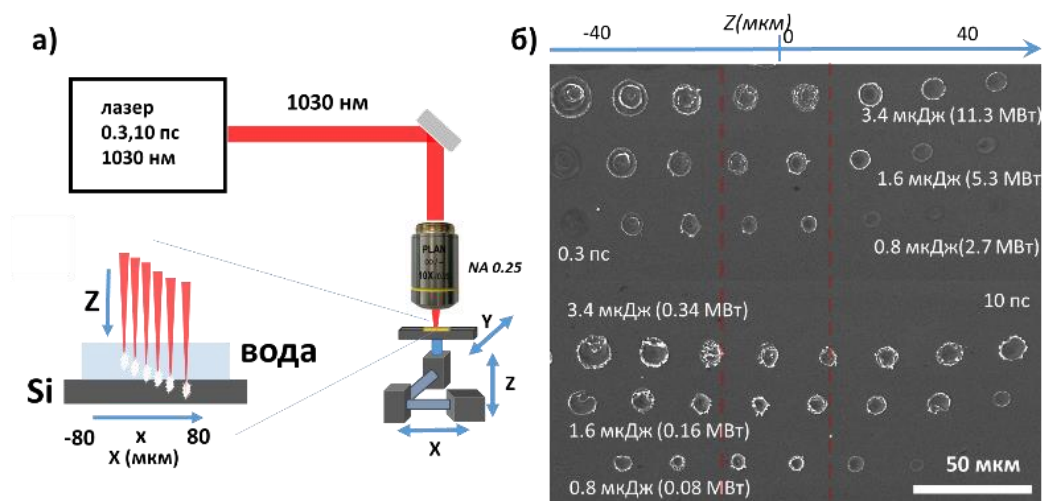


Рис.8. а) Абляция мишени при сканировании через весь образец, б) СЭМ снимки абляционного рельефа на кремнии для разного положения геометрического фокуса относительно поверхности мишени.

При этом область, где глубина и объем кратеров, остаются практически постоянными, увеличивается, что по всей видимости связано, с проявлением филаментации. Объёмы кратеров при энергиях 1.6, 0.8 мкДж ведут себя аналогичным образом: для большей энергии наблюдается смещение максимальной глубины кратера в область отрицательных значений Z , что соответствует ситуации, когда фокус находится выше мишени. Данный факт можно связать с тем, что оптимальная плотность энергии имеет небольшую величину и при больших энергиях в импульсе с точки зрения выноса вещества с поверхности материала ($\text{мкм}^3/\text{Дж}$) более выгодным является увеличение фокального пятна. Полученные данные хорошо коррелируют с предыдущими результатами, где наблюдали аналогичные зависимости для глубин и объемов. При этом максимум абляции для филаментационного режима наблюдается вблизи геометрического фокуса.

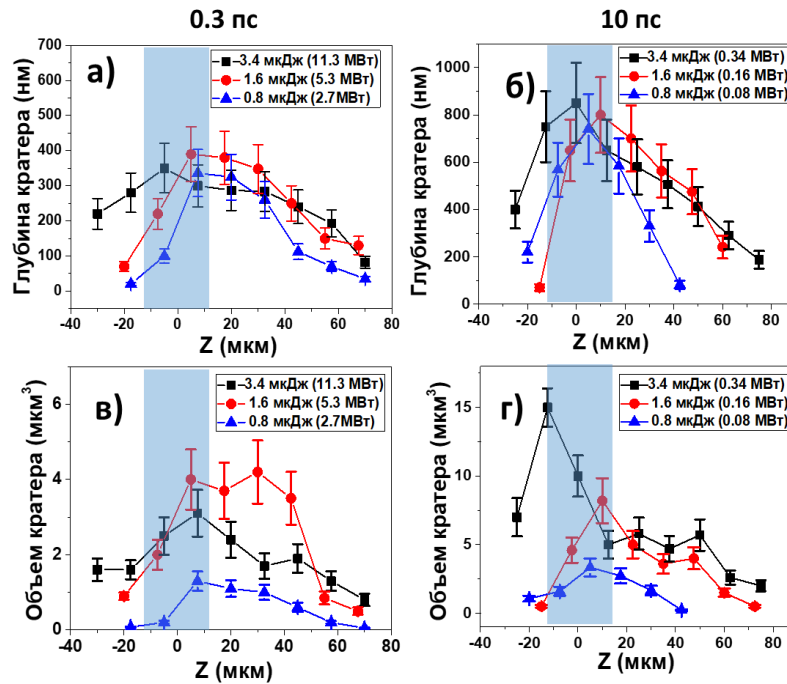


Рис.9. Глубины и объемы кратеров для длительности УКИ 0.3 пс (а, в) и 10 пс (б, г)

В конце **четвертой главы** производилось исследование одноимпульсных кратеров с помощью спектроскопии комбинационного рассеяния света (КРС) для длительности УКИ 0.3 и 10 пс для кратеров, полученных в воздушной и водной средах. Сдвиг и появившуюся асимметрию главного пика (521 см^{-1}) на спектрах, полученных из областей на краях кратеров, мы связываем с возникновением нанокристаллитов в этой области. Рассчитать размер нанокристаллитов можно по сдвигу $\Delta\omega$ фононной моды кремния и полученные данные по сдвигу полос КРС дает оценку $D \sim 7 \div 8 \text{ нм}$.

Было произведено сравнение сдвигов полос КРС кремния в центре кратеров от длительности и энергии. Расчет возникающих напряжений производился по формуле [17].

$$\sigma (\text{МПа}) = -435 \cdot (\omega - \omega_0), \quad (3)$$

где ω – позиция пика кремния в ненапряженном состоянии, ω_0 – позиция пика кремния в напряженном состоянии. Наибольшие локальные сжимающие напряжения возникают в воде при субфиламентационном режиме при

максимальных плотностях энергии. В филаментационном режиме при значениях пиковой мощности более 3 МВт ($P \geq P_{cr}$) уменьшается эффективная плотность энергии (доля энергии которая доходит до поверхности мишени), тем самым понижая возникающие в процессе абляции напряжения.

3. ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

Данная работа посвящена исследованию взаимодействия ультракоротких лазерных импульсов с золотой и кремниевой объемными мишенями в воздушной и водных средах. Актуальность такого исследования обусловлена как с практической точки зрения – представлены систематические результаты, позволяющие оптимизировать параметры лазерной системы для обработки поверхности в зависимости от контактной среды так и с фундаментальной, где полученные результаты являются важными с точки зрения поглощения и транспорта энергии.

В диссертационной работе были получены следующие основные результаты:

1. При одноимпульсной абляции в воздушной среде поверхности мишени золота жестко сфокусированными (числовая апертура = 0.65) ультракороткими лазерными импульсами с длиной волны 515 нм и 1030 нм наблюдается уменьшение глубины кратеров в 2.5 раза с ростом длительности импульса от 0.3 до 10 пс. Наблюдаемый эффект связан с уменьшением вклада фазового взрыва в процесс абляции.

2. Для одноимпульсной абляции в водной среде мишени золота и кристаллического кремния жестко сфокусированными ($NA = 0.25, 0.65$) лазерными импульсами с длиной волны 515 нм и 1030 нм с длительностями импульса в диапазоне 0.3-10 пс наблюдается уменьшение глубины кратера с уменьшением длительности лазерного импульса при одновременном соответствующем увеличении пиковой мощности импульсов. Наблюдаемый эффект связывается с достижением порога критической мощности самофокусировки лазерного излучения в воде, равным, соответственно, более 0.1 МВт для длины волны 515 нм и более 1 МВт для длины волны 1030 нм.

3. При одноимпульсной абляции поверхности кристаллического кремния в воздушной среде жестко сфокусированными ($NA = 0.25$) лазерными импульсами с длиной волны 1030 нм варьируемой длительности (0.3-10 пс) при низкой плотности энергии импульсов менее 5 Дж/см² отмечается аномальный рост радиусов кратеров сверх размеров пятна фокусировки, более сильно выраженный для импульсов меньшей длительности. Наблюдаемый эффект связывается с быстрым латеральным переносом энергии при абляционной плотности электрон-дырочной плазмы $\sim 10^{22}$ см⁻³ на временах электрон-фононной термализации ≈ 2 пс с эффективной скоростью расширения частично вырожденной электрон-дырочной плазмы в диапазоне $(0.2-0.4) \times 10^6$ м/с.

4. При одноимпульсной абляции поверхности кристаллического кремния в воздушной среде жестко сфокусированными ($NA = 0.25$) лазерными импульсами с длиной волны 1030 нм варьируемой длительности (0.3-10 пс) с ростом длительности импульсов при фиксированной плотности энергии в диапазоне <10 Дж/см² наблюдается замедление роста глубины абляции.

СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ АВТОРА ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Публикации в рецензируемых научных журналах, индексируемых в базах данных Web of Science и Scopus

1. Смирнов Н. А., Кудряшов С.И., Данилов П.А., Руденко. А.А., Ионин А.А., Настулявичус А.А. Одноимпульсная абляция кремния ультракороткими лазерными импульсами варьируемой длительности в воздухе и воде //Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2018. – Т. 108. – №. 6. – С. 393-398.

<https://doi.org/10.1134/S0370274X18180054>

2. Smirnov N. A., Kudryashov S. I., Rudenko A. A., Nastulyavichus A. A., Ionin A. A. Micro-Raman spectroscopy of single-shot pulse silicon craters produced by femto-picosecond laser in air and liquid //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2020. – Т. 1692. – №. 1. – С. 012012.

<https://doi.org/10.1088/1742-6596/1692/1/012012>

3. Смирнов Н., Кудряшов С., Мельник Н., Папилова П., Шерстнев И., Ионин А., Чэнь Ц. Индуцируемые напряжения, возникающие в кристаллическом кремнии при воздействии ультракоротких лазерных импульсов различной

длительности в воздухе и воде // оптика и спектроскопия. – 2021. – Т.129. – №6. – С. 1331-1335.

[DOI: 10.21883/OS.2021.10.51501.2399-21](https://doi.org/10.21883/OS.2021.10.51501.2399-21)

4. Smirnov N. A., Kudryashov S. I., Rudenko A. A., Zayarny D. A., Ionin A. A. Pulsewidth and ambient medium effects during ultrashort-pulse laser ablation of silicon in air and water //Applied Surface Science. – 2021. – Т. 562. – С. 150243. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2021.150243>

5. Smirnov N. A., Kudryashov S. I., Rudenko A. A., Nastulyavichus A. A., Ionin A. A. Ablation efficiency of gold at fs/ps laser treatment in water and air //Laser Physics Letters. – 2022. – Т. 19. – №. 2. – С. 026001. <https://doi.org/10.1088/1612-202X/ac46ab>

6. Nastulyavichus A., Smirnov N., Kudryashov S. Quantitative evaluation of LAL productivity of colloidal nanomaterials: which laser pulse width is more productive, ergonomic and economic? //Chinese Physics B. – 2022. – Т. 31. – №. 7. – С. 077803 (published online 17 February 2022) <https://doi.org/10.1088/1674-1056/ac5602>

Публикации в материалах конференций

1. Н.А. Смирнов, А.А. Настулявичус, П.А. Данилов, С.И. Кудряшов, А.А. Ионин, Производительная абляция поверхности кремния», *VII Международная молодежная научная школа-конференция «Современные проблемы физики и технологий»*. 16-21 апреля 2018 г, Сборник тезисов конференции., г. Москва, Россия, 2018 г. С 210.

2. Н.А. Смирнов, П. А. Данилов, С.И. Кудряшов, А.А. Ионин, А.А. Настулявичус, Д. А. Заярный, «Одноимпульсная абляция кремния ультракороткими лазерными импульсами варьруемой длительности», *IV Международная конференция Лазерные, плазменные исследования и технологии ЛаПлаз*. 30 января по 1 февраля 2018 г, сборник трудов конференции., г. Москва, Россия, 2018 г с 506.

3. N. Smirnov, P. Danilov, S. Kudryashov, A. Nastulyavichus, S. Umanskaya, A. Ionin, «Single- shot pulse ablation of silicon by ultrashort laser pulses of varying duration», *11th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications –ICPEPA 11*, 10-14 сентября 2018г, Programme Book of Abstracts., г. Вильнюс, Литва, 2018г. С 139.

4. N. A. Smirnov, S. I. Kudryashov, A. A. Nastulyavichus, A. A. Ionin, Single-shot femtosecond laser ablation of gold, *International Conference on Ultrafast Optical Science –UltrafastLight-2019*, 01 – 05 октября 2019 г, Сборник тезисов конференции., г. Москва, Россия, 2019г. С 161.

5. S.I. Kudryashov, A.A. Ionin, N.A. Smirnov. «Single-shot pulse ablation of silicon by ultrashort laser pulses of variable duration in air and water», *International Conference on Ultrafast Optical Science -UltrafastLight-2020*, 28 сентября по 02 октября 2020 г, Сборник тезисов конференции., г. Москва, Россия 2020г. С 188.

6. N.A. Smirnov., S.I. Kudryashov, A.A. Ionin, Investigation of ambipolar diffusion of electron-hole plasma under the action of ultra-short laser pulses on a silicon, *International Conference on Ultrafast Optical Science -UltrafastLight-2021*, 04 – 08 октября 2021 г, Сборник тезисов конференции., г. Москва, Россия 2021г. С 114.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ, ЦИТИРОВАННОЙ В АВТОРЕФЕРАТЕ

1. Chichkov B.N. et al. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids // *Appl. Phys.* Springer, 1996. Vol. 63, № 2. P. 109–115.
2. Artyukov I.A. et al. Relaxation phenomena in electronic and lattice subsystems on iron surface during its ablation by ultrashort laser pulses // *JETP Lett.* Springer, 2014. Vol. 99, № 1. P. 51–55.
3. Stuart B.C. et al. Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics // *Phys. Rev. B.* American Physical Society, 1996. Vol. 53, № 4. P. 1749.
4. Ionin A.A., Kudryashov S.I., Samokhin A.A. Material surface ablation produced by ultrashort laser pulses // *Physics-Uspekhi.* IOP Publishing, 2017. Vol. 60, № 2. P. 149.
5. Young J.F., Van Driel H.M. Ambipolar diffusion of high-density electrons and holes in Ge, Si, and GaAs: Many-body effects // *Phys. Rev. B.* American Physical Society, 1982. Vol. 26, № 4. P. 2147.
6. Danilov P. et al. Electron-ion coupling and ambipolar diffusion in dense electron-hole plasma in thin amorphous Si films studied by single-shot, pulse-width dependent ultrafast laser ablation // *Appl. Surf. Sci.* 2017. Vol. 425. P. 170–175.

7. Steranka F.M., Wolfe J.P. Spatial expansion of electron-hole plasma in Si // *Phys. Rev. B. American Physical Society*, 1986. Vol. 34, № 2. P. 1014.
8. Allen P.B. Theory of thermal relaxation of electrons in metals // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, 1987. Vol. 59, № 13. P. 1460.
9. Kruusing A. Underwater and water-assisted laser processing: Part 1—general features, steam cleaning and shock processing // *Opt. Lasers Eng. Elsevier*, 2004. Vol. 41, № 2. P. 307–327.
10. Couairon A., Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media // *Phys. Rep. North-Holland*, 2007. Vol. 441, № 2–4. P. 47–189.
11. Butkus S. et al. Rapid microfabrication of transparent materials using filamented femtosecond laser pulses // *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process. Springer*, 2014. Vol. 114, № 1. P. 81–90.
12. Menéndez-Manjón A., Wagener P., Barcikowski S. Transfer-matrix method for efficient ablation by pulsed laser ablation and nanoparticle generation in liquids // *J. Phys. Chem. C. American Chemical Society*, 2011. Vol. 115, № 12. P. 5108–5114.
13. Sylvestre J.P. et al. Femtosecond laser ablation of gold in water: influence of the laser-produced plasma on the nanoparticle size distribution // *Appl. Phys. A* 2004 804. *Springer*, 2005. Vol. 80, № 4. P. 753–758.
14. Yang J. et al. Ablation of metallic targets by high-intensity ultrashort laser pulses // *Phys. Rev. B. American Physical Society*, 2007. Vol. 76, № 16. P. 165430.
15. Petrov Y. V et al. Thermal conductivity of condensed gold in states with the strongly excited electron subsystem // *J. Phys. Conf. Ser. IOP Publishing*, 2015. Vol. 653, № 1. P. 012087.
16. Ashitkov S.I. et al. Mechanical and optical properties of vanadium under shock picosecond loads // *JETP Lett. Springer*, 2015. Vol. 101, № 4. P. 276–281.
17. De Wolf I. Stress Measurements in Si Microelectronics Devices using Raman Spectroscopy. 1999. Vol. 30. P. 877–883.