

13,11

О механизме формирования интерференционных колец в области абляции с поверхности конденсированных сред при облучении их фемтосекундными лазерными импульсами

© Н.Е. Быковский, Ю.В. Сенатский

Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,
Москва, Россия

E-mail: nbykovsky@sci.lebedev.ru

(Поступила в Редакцию 14 июня 2017 г.)

Проведен анализ динамики формирования интерференционных колец Ньютона, возникающих в области абляции с поверхности различных конденсированных сред при облучении их лазерными импульсами фемтосекундной длительности (по материалам публикаций по fs абляции). Представлены полученные в результате обработки интерферограмм данные об эволюции показателя преломления в расширяющемся облаке вещества с поверхности металла, полупроводника и диэлектрика. Рассмотрен механизм формирования в тонком слое под поверхностью облучаемых образцов зоны концентрации энергии, поглощенной средой из лазерного пучка. Формирование внутреннего слоя с повышенным энерговыделением объясняет почему процесс абляции с поверхности металла, полупроводника и диэлектрика, несмотря на различия в их составах и механизмах поглощения излучения, протекает сходным образом: с образованием на внешней границе абляционного облака тонкой оболочки из конденсированной среды, которая отражает излучение и вместе с поверхностью мишени образует структуру, необходимую для возникновения интерференции.

DOI: 10.21883/FTT.2018.02.45399.197

1. Введение

Абляция с поверхности конденсированных сред под действием импульсов лазерного излучения — предмет многочисленных экспериментальных и теоретических исследований с 1960-х гг. по настоящее время, см. обзоры [1–4]. В последние два-три десятилетия изучается абляция с поверхности металлов, диэлектриков и полупроводников под действием ультракоротких (фемтосекундных) импульсов при интенсивностях излучения $I \approx 10^{12} \text{ W/cm}^2$ и выше [2–16]. Одним из интересных результатов здесь стало наблюдение переходных состояний конденсированной среды при ее взрывном расширении после практически мгновенного выделения энергии сфокусированного fs лазерного импульса в пятне $\varnothing 100\text{--}300 \mu\text{m}$ на поверхности образца [7]. Возможность реализации переходных состояний при лазерной абляции (просветления среды из-за перехода металл–диэлектрик) обсуждалась еще в 1970-х гг., когда эксперименты проводились с импульсами свободной генерации и наносекундными импульсами, $I = 10^6\text{--}10^8 \text{ W/cm}^2$ [17–20]. Применение fs импульсов в экспериментах по абляции дало возможность исследовать короткоживущие переходные состояния расширяющейся среды с высоким временным и пространственным разрешением. При просвечивании облака вещества, возникающего у порога абляции с поверхности образцов из металла, полупроводника и диэлектрика, были обнаружены кольца Ньютона — результат интерференции излучения пробного диагностического лазерного пучка в слоях расширяющейся среды [7–10].

Покадровая съемка интерференционных картин с fs разрешением позволила проследить динамику расширения облака абляции с отслоением пленки расплавленного материала от поверхности мишени и предложить физические модели взаимодействия ультракоротких импульсов со средой [4,7–16,21–23]. Анализ интерференционных картин с кольцами Ньютона, полученных в [7–16], был проведен также в препринте [24]. В настоящей работе обсуждаются данные по эволюции показателя преломления расширяющейся среды при fs абляции с поверхности металла, полупроводника и диэлектрика, полученные после обработки интерферограмм из работ [7–16], рассматривается механизм формирования зоны абляции при облучении конденсированной среды ультракороткими импульсами [24].

2. Интерференционные картины в области абляции конденсированной среды при воздействии ультракоротких лазерных импульсов (по литературе)

Интерференционные картины (кольца Ньютона) в области абляции при фокусировке fs импульсов на пленки из металлов (Al, Ti и Au) на стеклянной подложке или на образцы из Si были обнаружены в работах [7,8], рис. 1. Использовались одиночные импульсы лазера на красителе длительностью $\tau = 100\text{--}120 \text{ fs}$ при $I = 10^{12}\text{--}10^{13} \text{ W/cm}^2$, длина волны излучения около

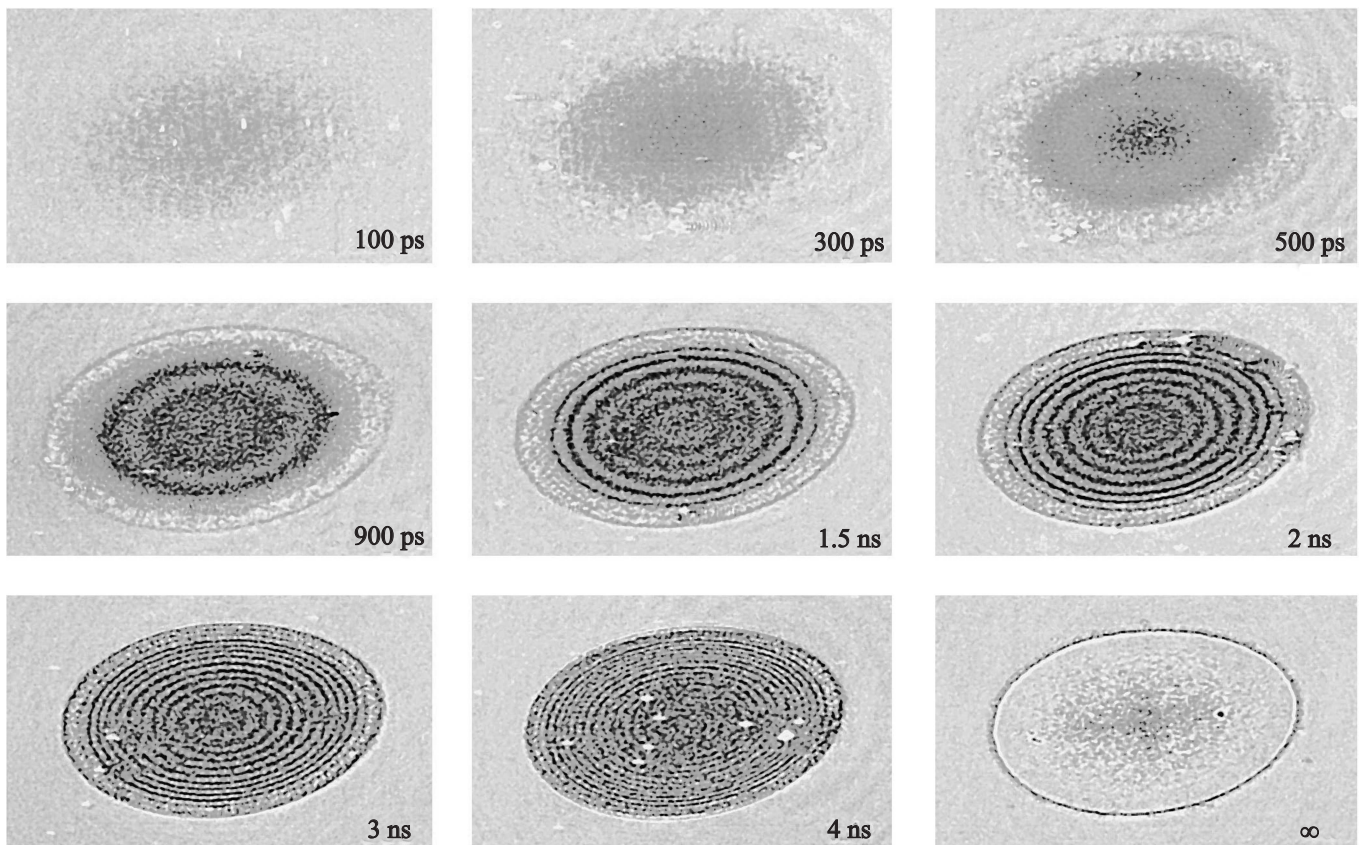


Рис. 1. Покадровая съемка области абляции с поверхности Al-пленки толщиной 100 нм под действием одиночного импульса ($\tau \approx 120$ fs, $\lambda_p \approx 620$ нм) с плотностью энергии $\varepsilon \approx 1.2$ Дж/см². Размер кадров 280×160 мкм, время экспозиции одного кадра 120 fs, $\lambda_{pr} \approx 620$ нм [8].

$\lambda_p = 620$ нм. Область абляции $\varnothing 100\text{--}300$ мкм просвечивалась через микроскоп пробным пучком — импульсами того же лазера малой мощности, $\lambda_{pr} = \lambda_p$ (метод „накачка—зондирование“). С помощью ПЗС-камеры через микроскоп производилась (используя отраженное излучение пробного пучка) покадровая съемка области абляции через промежутки времени от долей пикосекунды до десятков наносекунд после прихода импульса накачки на мишень. Съемка позволила проследить для всех образцов в интервале времени до $t \approx 20$ нс формирование в области абляции системы колец Ньютона, число и размеры которых менялись со временем, следуя динамике расширения среды, рис. 1.

Для возникновения интерференции необходимы отражающее излучение пробного пучка поверхности. Одной из таких поверхностей в экспериментах [7,8] являлась поверхность мишени, а второй (по предположению авторов) — внешняя оболочка абляционного слоя в виде частично прозрачной пленки из расплавленного вещества мишени (толщина несколько нм, диаметр ≈ 100 мкм). Необходимым условием для формирования интерференционной картины являлось также существование между двумя отражающими поверхностями прозрачной для пробного пучка среды — расширяющегося

слоя абляции [7,8]. Кольца Ньютона при воздействии fs импульсов на мишени из Al, Ti, Au, Mg, Hg, Si, GaAs при $I = 10^{12}\text{--}10^{13}$ Вт/см² наблюдались в [7–11], а в подобных экспериментах [12,13] кольца наблюдались на поверхности диэлектриков: кристаллов LiNbO₃ (рис. 2), Al₂O₃ и стекла SF57, содержавшего свинец, облучавшихся 120 fs импульсами Ti:Sa лазера ($\lambda_p \approx 800$ нм, $\lambda_{pr} \approx 400$ нм).

Данные покадровой съемки колец Ньютона при абляции с поверхности образцов [7–13] позволяют проследить динамику изменения показателя преломления n расширяющегося абляционного слоя. Максимальная толщина слоя d , на котором образуется m -ое кольцо, равна $d = \frac{m\lambda}{2n}$, откуда $n = \frac{m\lambda}{2d}$. При оценках параметров среды в облаке абляции можно допустить, что в конце интервала наблюдения колец плотность вещества за счет расширения абляционного слоя ($\frac{V_t}{V_0} > 10^2$, V_0 — начальный, а V_t — конечный объемы слоя) мало отличается от плотности окружающей среды (воздуха) и показатель преломления в облаке $n \approx 1$.

Типичная толщина абляционного слоя в конце интервала наблюдения колец составляла $1\text{--}3$ мкм [7–13]. Можно допустить также постоянство (в течение времени наблюдения) скорости оболочки абляционного слоя ϑ ,

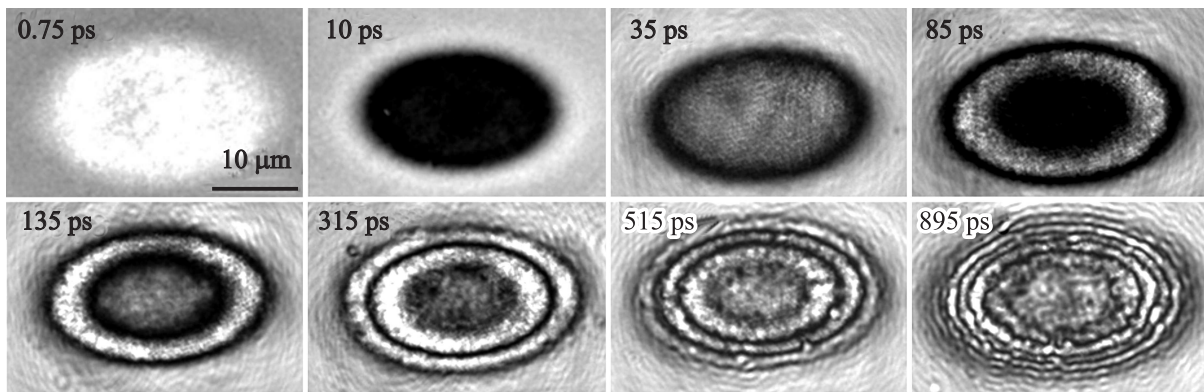


Рис. 2. Покадровая съемка области абляции с поверхности кристалла LiNbO_3 под действием 120 fs импульса, $\varepsilon \approx 2 \text{ J/cm}^2$, $\lambda_p \approx 800 \text{ nm}$. Размер пятен фокусировки $98.4 \times 59.0 \mu\text{m}$ по уровню $1/e^2$, время экспозиции кадра 120 fs, $\lambda_{pr} \approx 400 \text{ nm}$ [12].

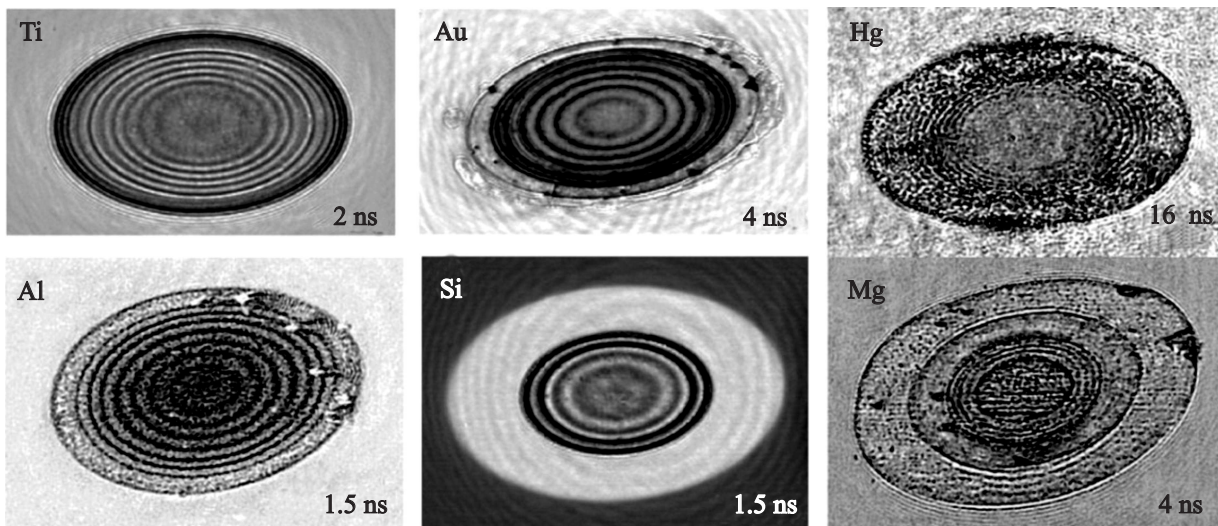


Рис. 3. Кадры съемки области абляции с поверхности мишеней из Ti, Au, Hg, Al, Si, Mg с кольцами Ньютона. Для мишеней Si и Au $\varepsilon = 0.47 \text{ J/cm}^2$, для Al $\varepsilon = 1.2 \text{ J/cm}^2$, для Hg $\varepsilon = 0.25 \text{ J/cm}^2$, а для Mg $\varepsilon = 2.1 \text{ J/cm}^2$; $\lambda_p = \lambda_{pr} \approx 620 \text{ nm}$ [7–10].

которую она приобрела после взрывного расширения среды. Заметим, что в первые несколько ns при плоском разлете оболочка не должна испытывать сопротивления со стороны окружающей среды и сил поверхностного натяжения. Постоянство скорости v отмечалось в работах [7–13]. На поздних стадиях расширения на это указывает неменяющееся отношение прироста числа колец к интервалу времени, за которое оно произошло. Скорость можно определить из соотношения $v = \frac{m\lambda}{2nt}$, зная число колец m в конце интервала t и полагая $n = 1$. Подсчет производился по кадрам из работ [7–13], рис. 1–3.

Например, для оболочки из Si при $\varepsilon = 0.47 \text{ J/cm}^2$, $\tau \approx 120 \text{ fs}$ и $\lambda_p \approx 620 \text{ nm}$ скорость равна $v \approx 1 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$, а для Al при $\varepsilon = 1.2 \text{ J/cm}^2$ $v \approx 1.2 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$. Таким же образом подсчитанные скорости для Au и Ti равны $v_{\text{Au}} \approx 0.5 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$ и $v_{\text{Ti}} \approx 1.5 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$. Вычисления для LiNbO_3 по данным рис. 2 [12] для $\varepsilon = 1.55 \text{ J/cm}^2$,

$\lambda_p \approx 800 \text{ nm}$, $\lambda_{pr} \approx 400 \text{ nm}$ дают $v_{\text{LiNbO}_3} \approx 1.3 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$. Скорость разлета зависит от вложенной в данный объем среды энергии накачки. Так для оболочки из Ti по данным [11] при $\varepsilon = 0.41 \text{ J/cm}^2$ и $\varepsilon = 0.27 \text{ J/cm}^2$ для $\tau \approx 40 \text{ fs}$, $\lambda_p = \lambda_{pr} \approx 800 \text{ nm}$ в момент 1.8 ns после воздействия оценка дает соответственно $v_{\text{Ti}} \approx 1.3 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$ и $v_{\text{Ti}} \approx 0.8 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$. Для оболочки из Si по данным [14] через 500 ps после воздействия 35 fs импульсов при ε от 0.11 до 0.34 J/cm^2 оценка дает значения v_{Si} от $\sim 2.4 \cdot 10^5$ до $\sim 5 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$.

Приравняв скорости разлета вещества с поверхности конкретной мишени для различных моментов t , мы получим выражение, связывающее текущие значения показателей преломления расширяющейся среды $n_i = \frac{n_0 m_i t_0}{m_0 t_i}$. Здесь m_0, n_0 — количество колец интерференции и показатель преломления в момент t_0 , а m_i и n_i — в момент t_i . Если за t_0 взять время, когда $n_0 = 1$, то можно из последовательности кадров в работах [7–13],

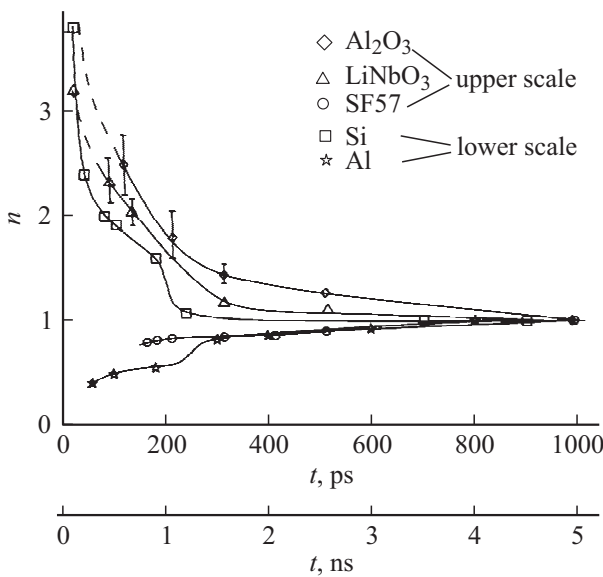


Рис. 4. Зависимость от времени показателей преломления расширяющихся абляционных слоев, ограниченных оболочкой, с поверхности различных конденсированных сред под действием fs импульсов с плотностью энергии $0.5\text{--}2\text{ J/cm}^2$ по данным экспериментов [7–13]. Длина волны пробного импульса для Al_2O_3 , LiNbO_3 и SF57 — $\lambda_{pr} \approx 400\text{ nm}$, а для Si и Al — $\lambda_{pr} \approx 620\text{ nm}$.

рассчитать n_i для соответствующих значений времени и построить зависимость $n_i(t)$, т. е. динамику изменения показателя преломления в зоне абляции для различных сред, рис. 4. Как видно из рис. 4 на конечном этапе абляции ($t > 5\text{ ns}$) для всех типов мишеней показатель преломления расширяющейся среды $n \approx 1$, т. е. среда становится подобной разреженному газу из нейтральных частиц. Однако, как показывает сопоставление зависимостей $n(t)$, при абляции с поверхности металла, полупроводника и диэлектрика, вещество превращается в разреженный газ, проходя через различные промежуточные состояния. У Si, Al_2O_3 и LiNbO_3 n спадает от значений $n > 3$ при $t = 10\text{ ps}$ до $n = 1$ при $t = 1\text{ ns}$, а в случае Al и стекла SF57, наоборот, показатель растет от малых значений $n \approx 0.4$ до $n = 1$. Отметим, что значения $n < 1$ характерны для среды со свойствами плазмы. В то же время, при абляции с поверхности Al_2O_3 , LiNbO_3 и Si показатель $n > 1$, что характерно для среды, состоящей из нейтральных атомов или молекул. Расчетные значения n на рис. 4 на малых временах разлета ($t < 100\text{ ps}$) для Si, Al_2O_3 и LiNbO_3 превышают известные табличные значения ($n_{\text{Si}} \approx 4$, $n_{\text{LiNbO}_3} = 2.44$, $n_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 1.79$). Этот недостаток связан с тем, что в начале движения скорость оболочки меньше, чем установившаяся впоследствии стационарная скорость, значение которой использовалось в расчетах по формуле $n = \frac{m\lambda}{2\vartheta t}$. Для Al_2O_3 и LiNbO_3 показана величина ошибки определения n , которая связана с точностью подсчета числа колец на малых временах разлета. На рис. 1, 2 на

первых кадрах заметно отставание до 1 ns динамики формирования колец Ньютона при абляции Al по сравнению с диэлектриками (LiNbO_3 , Al_2O_3) и Si, несмотря на то, что скорости разлета этих материалов близки. Задержка в формировании первых колец (почти на 300 ps) заметна и на кривых $n(t)$ для Al по сравнению с диэлектриками на рис. 4. Такой ход зависимостей объясняется различием в показателях преломления при расширении этих сред. Толщина слоя, необходимая для образования одного кольца, равна $d = \frac{\lambda}{2n}$. Так как показатель n при расширении Al намного меньше, чем при расширении Si и диэлектриков, то и время развития интерференционной картины (формирования слоя, дающего одинаковый набег фаз) для Al мишени увеличивается. Отмеченные выше особенности эволюции показателя преломления $n(t)$ расширяющейся среды при fs абляции с поверхности металла, полупроводника и диэлектрика обсуждаются дополнительно в следующем разделе.

3. О механизме формирования области абляции при облучении конденсированной среды ультракороткими лазерными импульсами

Динамические картины колец Ньютона, данные других экспериментов по fs абляции конденсированных сред были использованы для разработки физических моделей формирования области абляции, см. например [4,21]. Как показано в этих работах, цепь физических процессов, протекающих в среде при fs абляции, начинается с поглощения излучения в поверхностном слое образца, которое происходит за время действия лазерного импульса („накачки“). Энергия накачки поглощается в электронной подсистеме среды и передается в глубину мишени электронной теплопроводностью. Одновременно происходит передача энергии от электронов решетке. Режим с воздействием fs импульса можно считать режимом инерциального удержания вещества мишени: закончившийся импульс накачки создает неподвижный нагретый слой в „нагруженном“ состоянии. Из-за инерции вещества термомеханические напряжения в этом слое нарастают по мере передачи энергии от электронов атомам. Разгрузка (течение) вещества происходит при тепловом расширении нагретого слоя и сопровождается распространением ударных волн. Гидродинамическое движение начинается после электрон-фононной релаксации, когда температуры электронов и ионов примерно одинаковы [4,21]. Особенность течения заключается в наличии двух структурных элементов зоны абляции: тонкой оболочки из конденсированного вещества и резко отличающегося от нее по свойствам основного компонента — облака парогазовой смеси. Оболочка формируется на внешнем краю разлетающегося с поверхности облака вещества

и движется с постоянной скоростью и плотностью, оставаясь в конденсированном состоянии. Смесь пар-жидкость расширяется путем однородной деформации, ее средняя плотность падает обратно пропорционально времени разлета, в зоне абляции на поверхности мишени образуется кратер. Выдвигались предположения о механизме образования оболочки у облака абляции: рассматривался паровой разрыв термически-расширенного расплава, формирование перепада плотности при распространении в среде волны разрежения и др. [4,7–10,12,21].

Анализ данных [7–16] позволяет дополнить физическую картину формирования области абляции с поверхности конденсированных сред при их облучении fs импульсами [24]. Эксперименты [7–16] указывают на существование отражающего излучение тонкого слоя из конденсированного вещества (оболочки) на периферии расширяющейся среды уже на самом начальном этапе абляции: через 10–100 ps после импульса накачки в области абляции с поверхности различных материалов возникают интерференционные картины, рис. 1, 2 [7–13]. Этот факт позволяет высказать предположение: основная энергия, приобретенная веществом при поглощении fs импульса накачки, выделяется не в поверхностном слое мишени, а внутри нее, под поверхностью, оставляя тонкий поверхностный слой, отражающий излучение, в конденсированном состоянии (при температуре около точки плавления). Такое заключение можно сделать для всех мишеней (металлы, полупроводники, диэлектрики), изученных в [7–16]. Описание процессов, протекающих в среде при формировании облака абляции с оболочкой, следует ниже.

Рассмотрим, как может сформироваться облако расширяющейся среды с оболочкой из конденсированного вещества в случае металлической мишени. В металлах поглощение происходит в поверхностном слое Δl_s толщиной несколько nm [25]. При поглощении фотонов с энергией $h\nu$ электроны из этого слоя синхронно приобретают кинетическую энергию и механический импульс, под действием которого перемещаются в глубь среды примерно на длину свободного пробега. Перемещение электронов во внутренний слой (баллистический разлет [26,27]) происходит за время действия лазерного импульса. Потенциальная энергия, связанная с разделением зарядов, идет на возбуждение упругих колебаний в поверхностном слое (когерентных фононов [3]). Длина свободного пробега электронов Λ зависит от состояния кристаллической решетки: ее периода и дальнего порядка в ней. Λ может в десятки раз превышать период решетки. Даже при T около температуры плавления металла, $\Lambda \approx 50$ периодов решетки [25]. Таким образом, при облучении металлической мишени fs импульсом в результате синхронного перемещения электронов по направлению лазерного пучка происходит их накопление во внутреннем слое под поверхностью образца. Повышение концентрации электронов нарушает

распределение полей в решетке, сокращая Λ . Если концентрация электронов во внутреннем слое становится сравнимой с концентрацией атомов, то изменяется не только Λ (уменьшается до межатомного расстояния, $\Lambda \sim 10^{-8}$ cm), но нарушается также стабильность решетки: нарушаются связи между атомами, из-за чего энергия электронов передается не решетке, а непосредственно самим атомам. Таким образом, электроны во внутреннем слое оказываются „заперты“ среди несвязанных между собой атомов, что резко увеличивает частоту их взаимодействия и скорость передачи энергии атомам. Если суммарная энергия электронов во внутреннем слое превышает энергию связи атомов металла, то происходит разориентация атомов, и стабильность кристаллической решетки нарушается. Однако, если энергия электронов невелика, то атомы остаются на своих местах и восстанавливают связи, а электроны диффундируют в первоначальное расположение. Если же суммарная энергия электронов, переместившихся во внутренний слой мишени, намного превышает энергию связи атомов, то происходит быстрое выравнивание энергий атомов и электронов, скачок давления в среде и взрывное вскипание внутреннего слоя, приводящее к образованию расширяющегося облака абляции, на периферии которого оказывается относительно „холодная“ тонкая оболочка из конденсированного вещества.

Расположение и толщина Δl внутреннего слоя, где выделяется основная энергия, зависят от исходной концентрации свободных электронов в образце, параметров кристаллической решетки и длительности импульса τ , от которой зависит синхронность смещения электронов. Если в металле исходная концентрация высокая, то поглощающий поверхностный слой Δl_s тонкий, порог абляции ϵ_t низкий, внутренний слой расположен неглубоко, а образующийся кратер мелкий. Если электронов мало, то поглощение фотонов происходит на большей глубине образца. Сопоставление с экспериментальными данными подтверждает этот вывод. У титана с его четырьмя электронами на внешней оболочке атомов концентрация электронов в среде максимальна, порог абляции минимален $\epsilon_t \sim 0.18$ J/cm², а глубина кратера всего ~ 7 nm [11]. Это означает, что в Ti мишени энергия выделилась на еще меньшей глубине, а Δl составляет несколько nm. По сравнению с другими металлами энергия, приходящаяся на один атом, и, следовательно, скорость расширения вещества у Ti мишени выше. В золоте, где на один атом приходится всего один электрон на внешней оболочке, глубина кратера ~ 60 nm при $\epsilon_t \sim 0.41$ J/cm² [11].

Сходные процессы формирования зоны абляции происходят и при облучении fs импульсами поверхности диэлектриков и полупроводников. Для прямого возбуждения фононов излучением необходимо, чтобы длительность воздействия на атомы в решетке была меньше или порядка половины периода возбуждаемых колебаний. Так как период оптических фононов $T \geq 10^{-13}$ s, то при fs накачке проявление таких нелинейных эффектов

как ВРМБ и ВКР в диэлектриках невозможно. Эффект, позволяющий трансформировать энергию излучения в кинетическую энергию атомов при fs накачке диэлектриков с шириной запрещенной зоны E_g фотонами с энергией $h\nu < E_g$, — многофотонное поглощение, приводящее к ионизации атомов с последующим поглощением фотонов образующимися электронами. Этот процесс начинает развиваться локально в тех малых областях среды, где E_g минимально. Такие области в избытке есть в поверхностном слое образца (в пределах нескольких периодов кристаллической решетки), что связано с максимальной концентрацией в поверхностном слое дефектов и адгезией в этот слой молекул из внешней среды. В результате, именно в поверхностном слое диэлектрика ($\Delta l_s = 10^{-7} - 10^{-6}$ см) при многофотонном поглощении генерируются первые свободные электроны, которые, поглощая накачку, проникают вглубь образца на длину Λ и образуют внутренний слой.

Находящиеся во внутреннем слое электроны частично экранируют заряд окружающих атомов, смещая их энергетические уровни вверх, что уменьшает E_g и энергию квантов, необходимую для вырывания дополнительных электронов. Таким образом, увеличивается вероятность перехода электронов в зону проводимости. Чем больше становится концентрация электронов, тем меньшая энергия излучения тратится на вырывание следующих и процесс накопления электронов приобретает лавинообразный характер.¹ Рост числа электронов искажает внутрикристаллическое поле, резко сокращается Λ , и электроны „запираются“ во внутреннем слое, увеличивая энергию за счет поглощения дополнительных фотонов. Большая концентрация электронов приводит к тому, что трансформация лазерной энергии в кинетическую энергию атомов и молекул в результате термализации электронов вызывает взрывное расширение внутреннего слоя и образование облака абляции, как и в случае абляции с поверхности металлической мишени. В диэлектриках для начала абляции энергия электронов, приходящаяся на одну молекулу, как минимум, должна превышать ее энергию связи. Если же энергия электронов превышает энергию связи отдельных атомов в молекуле, то происходит отрыв наименее связанных атомов.

В поверхностном слое разница между энергией, затраченной на ионизацию атомов в результате многофотонного процесса и энергией освобожденных электронов, а также энергия, связанная с разделением зарядов, идет на возбуждение упругих колебаний в этом слое. При этом энергия, приходящаяся здесь на атомы, значительно меньше, чем во внутреннем слое, что обеспечивает

¹ Заметим, что по описанному механизму происходит поглощение накачки и в случае фокусировки лазерного излучения в объем прозрачного диэлектрика. При фокусировке вглубь процесс многофотонного поглощения происходит при превышении порога в области перетяжки на каких-либо дефектах кристаллической решетки, вызывая в среде лавинообразную ионизацию. Этот процесс в некоторых работах по лазерному разрушению связывают с оптическим пробоем, существование которого никто до сих пор не доказал.

образующемуся абляционному облаку оболочку из конденсированного вещества.

Зная размеры кристаллических ячеек, массы, энергии связи и размеры атомов, можно оценить время, за которое во внутреннем слое в результате упругих столкновений энергия электронов передается атомам, происходит дезинтеграция решетки и начинается абляция. Так как электрон по сравнению с атомом — точечная частица, можно считать, что его взаимодействие с атомом в ячейке кристаллической решетки происходит на расстоянии от центра атома равном или меньшем его эффективного радиуса r_a . Вероятность взаимодействия электронов с атомами P пропорциональна отношению вероятностей их нахождения в объеме атома и в объеме атомной ячейки $V_{a.c.}$, то есть пропорциональна отношению этих объемов $P \approx \frac{4\pi r_a^3}{3V_{a.c.}}$ (считаем, что электроны двигаются хаотически). Зная концентрацию электронов во внутреннем слое, приходящуюся на атомную ячейку n_e , вероятность P и отношение масс электрона и атома, получим эффективный коэффициент передачи энергии за один проход электрона в пределах ячейки $K \approx \frac{4\pi r_a^3 n_e m_e}{3m_a V_{a.c.}}$. Умножив K на энергию поглощенных электронами фотонов $kh\nu$ (k — среднее число фотонов, приходящееся на электрон), получим эффективную энергию, передаваемую атому в ячейке за проход. Если теперь энергию связи атома в решетке E_b разделить на эту величину, то мы получим минимальное число проходов, необходимое для вырывания атома из решетки $N_{\min} \approx \frac{E_b 3m_a V_{a.c.}}{4\pi r_a^3 m_e n_e k h\nu}$. Для диэлектриков и полупроводников эта формула не совсем верна, так как на перевод валентных электронов в свободные необходимо затратить энергию, равную ширине запрещенной зоны E_g . В этом случае энергия образующихся свободных электронов будет меньше на E_g , что уменьшает передаваемую атомам энергию. Так как в формулу для N_{\min} входит произведение $n_e k \cdot h\nu$, равное суммарной энергии электронов в ячейке E_c , то эту величину можно оценить, даже не располагая данными по n_e и k . E_c можно найти, зная плотность энергии излучения $\varepsilon = I\tau$, объем ячейки $V_{a.c.}$ (определяется отношением молярного объема к числу Авогадро) и толщину внутреннего слоя Δl . Энергия, приходящаяся на одну ячейку $E_c = n_e k h\nu = \frac{I\tau V_{a.c.}}{\Delta l}$. Если положить $\Delta l \sim 10^{-6}$ см, $V_{a.c.} \approx 2 \cdot 10^{-23}$ см³, то при $\varepsilon = I\tau \sim 0.5$ Дж/см² получим $E_c \approx 10^{-17}$ Дж. Выражение для N_{\min} можно переписать в виде $N_{\min} \approx \frac{3\Delta l E_b m_a}{4\pi r_a^3 I\tau m_e}$. Для кристалла, состоящего из многоатомных молекул, в формуле для N_{\min} необходимо брать энергию связи молекул, массу молекулы и суммарный объем входящих в нее атомов. Число пролетов электронов, необходимое для вырывания атома из кристаллической решетки, умноженное на усредненный размер атомной ячейки $r_{a.c.} \approx \sqrt[3]{\frac{3V_{a.c.}}{4\pi}}$ и деленное на скорость электронов ($v_e \sim 10^8$ см/с), равно времени дезинтеграции решетки $t_d \approx \frac{N_{\min} r_{a.c.}}{v_e}$. В этой

формуле не учтено изменение v_e в процессе передачи энергии атомам, которое слабо влияет на конечный результат. Отметим, что величина t_d близка, но не совпадает со временем термализации, так как момент t_d наступает до ее завершения. Оценка времени t_d по данным экспериментов [7–9] при $\varepsilon = 0.5 \text{ J/cm}^2$ дает для Ti значение $t_d \sim 2.7 \text{ ps}$, а для Si $t_d \sim 2.1 \text{ ps}$, или с учетом E_g $t_d \sim 4.7 \text{ ps}$. Для эксперимента с Al пленкой при $\varepsilon = 2.1 \text{ J/cm}^2$ [7–9] $t_d \sim 0.26 \text{ ps}$. Уменьшение энергии накачки ведет к уменьшению E_c , что приводит к увеличению N_{\min} и t_d . В работе [28] при просвечивании Al фольги электронным пучком после воздействия на фольгу 120 fs лазерного импульса ($\varepsilon \sim 70 \text{ mJ/cm}^2$) через $\sim 3.5 \text{ ps}$ было зарегистрировано исчезновение дифракционной картины, означавшее дезинтеграцию решетки Al с разрушением дальнего порядка. Оценка для условий эксперимента [28] дает значение $t_d \sim 7.8 \text{ ps}$, которое отражает тенденцию роста t_d при снижении ε . Полученные оценки t_d не противоречат экспериментальным данным [7–16, 28], которые показывают, что процессы термализации в среде происходят за несколько ps. Например, в области абляции LiNbO₃ уже к 10 ps возникает первый минимум интерференции (рис. 2), который свидетельствует о передаче к этому моменту энергии лазера решетке с последующим расширением внутреннего слоя и образованием оболочки.

Энергия излучения, преобразованная во внутреннем слое мишени в кинетическую энергию атомов, затрачивается главным образом на формирование в среде ударных волн. Волна, распространяющаяся навстречу лазерному пучку, разгоняет оболочку, за которой следует облако расширяющегося вещества. Волна, идущая вглубь образца, прогревает среду, вызывает (на более поздней стадии) дополнительную абляцию и образование кратера. Фронтом первой волны является сама оболочка, двигающаяся из-за малой массы с высокой скоростью ($v \sim 1\text{--}1.5 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$). Вторая волна, связанная с прогревом и испарением большей массы вещества, имеет меньшую скорость. Оценить кинетическую энергию оболочки для Ti мишени можно по данным [11]. Так как глубина кратера в Ti всего 7 nm, можно предположить, что энергия выделилась на глубине 3–5 nm от поверхности. На саму оболочку остается слой толщиной $h = 1\text{--}2 \text{ nm}$, и это объясняет ее высокую скорость. Энергию оболочки с радиусом $r = 100 \mu\text{m}$ для Ti ($\rho \sim 4.5 \text{ g/cm}^3$) можно подсчитать по формуле $E = \frac{m v^2}{2} = \frac{\rho h \pi r^2 v^2}{2}$. Для $v \sim 1.5 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$ расчет дает $E \sim 2.6 \cdot 10^{-5} \text{ J}$ при гауссовом распределении энергии по сечению пучка накачки. Энергия импульса накачки при $\varepsilon = 0.18 \text{ J/cm}^2$ равна $\sim 5.4 \cdot 10^{-5} \text{ J}$. Таким образом, примерно половина энергии накачки идет на ускорение оболочки. Другая ее половина идет на формирование идущей вглубь образца ударной волны, нагрев и дополнительную абляцию, что приводит к образованию кратера на поверхности мишени.

Исходный поверхностный слой мишени оказывается обедненным свободными электронами (часть их ушла в глубь образца), и в нем сохраняется длина свободного пробега Λ , близкая к исходной. Поэтому выделение энергии в поверхностном слое меньше, чем во внутреннем слое. Это сохраняет целостность поверхностного слоя из конденсированного вещества, который становится оболочкой расширяющейся среды. Оболочка сохраняет свою устойчивость за счет сил поверхностного натяжения. От ее прочности и однородности зависит контраст наблюдаемых колец Ньютона. Контраст колец при абляции с поверхности различных сред отличается, рис. 3. Наибольший контраст наблюдается у Ti и Si мишеней, кольца сильно размыты у Mg и Hg мишеней [7–9]. Это наблюдение можно связать с прочностью оболочки, которая зависит от энергии связи E_b составляющих ее атомов. У Mg и Hg низкие энергии связи (у Mg $E_b = 1.53 \text{ eV}$, а у Hg $E_b = 0.694 \text{ eV}$) и коэффициенты поверхностного натяжения σ (у Mg $\sigma \sim 530 \text{ N/m}$, а у Hg $\sigma \sim 400 \text{ N/m}$). У Ti и Si $E_b = 4.85 \text{ eV}$ и $E_b = 4.64 \text{ eV}$, а $\sigma = 1500 \text{ N/m}$ и $\sigma = 750 \text{ N/m}$, что позволяет наблюдать при абляции Ti и Si четкие кольца высоких порядков.

На кадрах съемки области абляции с поверхности мишеней из Au и Mg (рис. 3) наряду с кольцами Ньютона можно наблюдать ряд особенностей, которые обусловлены неравномерным распределением интенсивности по пятну накачки. На периферии пятна, где интенсивность невелика, для этих мишеней наблюдается кольцо проплавления. В этой зоне энергия атомов не превышает энергию связи E_b , но достаточна для плавления материала. Во внутренней зоне пятна накачки, где интенсивность выше, происходит расширение среды, которое может протекать как с ограничивающей эту зону оболочкой (если энергия связи в оболочке превышает энергию атомов), так и без нее, в случае достаточного прогрева среды. Комбинация всех трех случаев наблюдается на рис. 3 для мишени из Mg, где имеется наружное оплавленное кольцо, затем следует область с расширяющейся оболочкой с кольцами Ньютона, и центральная область, где оболочка отсутствует. Подобная структура наблюдалась в [16] для Au мишени под действием 35 fs импульсов при $\varepsilon > 1.5 \text{ J/cm}^2$.

Из зависимости показателя преломления для Al мишени $n(t) < 1$ на рис. 4 можно сделать вывод, что энергия, приходящаяся на один атом в результате термализации электронов, превышает энергию ионизации, и среда в расширяющемся абляционном слое в пределах времени наблюдения интерференционных колец состоит из электронов и ионов. Когда промежуток между ионами при расширении абляционного слоя превысит расстояние устойчивой связи между ними, а относительные энергии соседних ионов станут меньше энергии ионизации, на них начинается локализация электронов, соответствующая фазовому переходу металл–диэлектрик

и приводящая к просветлению среды. Показатель преломления постепенно нарастает в ходе динамического охлаждения среды и уменьшения концентрации ионов в результате рекомбинации на них электронов. Так как в оболочке связи между атомами Al сохраняются, то ее коэффициент отражения остается достаточно высоким, что необходимо для формирования интерференционной картины.

Ход зависимостей $n(t) > 1$ для Si, Al₂O₃ и LiNbO₃ характерен для расширяющейся среды из нейтральных атомов, что свидетельствует о малой энергии ионов, приобретенной ими в ходе термализации среды, и поэтому о быстрой рекомбинации на них электронов в расширяющемся слое. При одинаковой поглощенной энергии излучения энергия электронов в диэлектриках ниже, чем в металлах, так как энергия фотонов затрачивается на преодоление электронами запрещенной зоны. В металлах этот фактор отсутствует, поэтому энергия электронов и ионизованных ими атомов выше, чем в диэлектриках, а время рекомбинации электронов в образующейся плазме существенно больше, $t \geq 1$ ns, рис. 4.

Требует дополнительного объяснения поведение зависимости показателя преломления $n(t) < 1$ для стекла SF57, которое характерно, скорее, не для диэлектрика, а для металла, рис. 4. Такое поведение связано, вероятно, с наличием в стекле свинца. Его высокая концентрация (40% PbO в SF57) при низкой энергии связи ($E_b = 2.04$ eV) делает Pb источником свободных электронов, которые поглощают основную долю накачки так, как это происходит в металлах. Кроме того, в стеклах отсутствует дальний порядок, что обуславливает малую длину свободного пробега электронов, которые концентрируются в более тонком, чем в кристаллах, внутреннем слое. Разогрев среды в тонком слое происходит до больших температур, что и способствует образованию в нем плазмы и „металлическому“ поведению $n(t)$.

4. Заключение

Проведен анализ результатов ряда экспериментов по фемтосекундной лазерной абляции с поверхности различных конденсированных сред, в которых при просвечивании слоя абляции были зарегистрированы интерференционные картины с кольцами Ньютона, отражающие динамику расширения слоя (по материалам публикаций 1998–2017 гг.). В результате обработки интерферограмм получены данные об эволюции показателя преломления в расширяющемся облаке вещества с поверхности образцов из металла, полупроводника и диэлектрика, даны оценки скорости расширения среды. Показано, что в диапазоне интенсивностей излучения, при которых наблюдались кольца Ньютона (10^{12} – 10^{13} W/cm²), вещество в облаке абляции с поверхности металлической мишени находится в состоянии плазмы, а для мишеней

из диэлектрика — в виде парогазовой смеси. Предложен механизм концентрации энергии, поглощенной средой из лазерного пучка, в узком слое под поверхностью мишени, даны оценки времени дезинтеграции кристаллической решетки в разогреваемом электронном слое. Предложенная модель формирования внутри образца слоя с повышенным энерговыделением объясняет почему процесс абляции с поверхности металла, полупроводника и диэлектрика, несмотря на различия в их составах и механизмах поглощения излучения, протекает сходным образом: на внешней границе расширяющегося абляционного облака образуется тонкая оболочка из конденсированной среды, которая отражает излучение и вместе с поверхностью мишени образует структуру, необходимую для возникновения интерференции.

Список литературы

- [1] J.F. Ready. Effects of high power laser radiation. Academic Press, N.-Y. (1971). 433 с.
- [2] С.И. Анисимов, Б.С. Лукьянчук. УФН **172**, 301 (2002).
- [3] E.G. Gamaly. Phys. Rep. **508**, 91 (2011).
- [4] А.А. Ионин, С.И. Кудряшов, А.А. Самохин. УФН **187**, 159 (2017).
- [5] B.C. Stuart, M.D. Feit, S. Herman, A.M. Rubenchik, B.W. Shore, M.D. Perry. J. Opt. Soc. Am. B **13**, 459 (1996).
- [6] E.G. Gamaly, A.V. Rode, B. Luther-Davies, V.T. Tikhonchuk. Phys. Plasmas **9**, 949 (2002).
- [7] K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri, D. von der Linde, A. Oparin, J. Meyer-ter-Vehn, S.I. Anisimov. Phys. Rev. Lett. **81**, 224 (1998).
- [8] K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri, D. von der Linde. Appl. Surf. Sci. **127–129**, 755 (1998).
- [9] K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri, D. von der Linde. Ultrafast Phenomena XI. Springer Series in Chemical Physics 63. Springer, Berlin, Heidelberg (1998). С. 316.
- [10] D. von der Linde, K. Sokolowski-Tinten. Appl. Surf. Sci. **154–155**, 755 (2000).
- [11] N. Stojanovic. Laser ablation driven by femtosecond optical and XUV pulses. Dissertation der Universität Duisburg–Essen (2008). 131 p.
- [12] M. Garcia-Lechuga, J. Siegel, J. Hernandez-Rueda, J. Solis. Appl. Phys. Lett. **105**, 112902 (2014).
- [13] M. Garcia-Lechuga, J. Siegel, J. Hernandez-Rueda, J. Solis. Frontiers in Optics. Opt. Soc. Am. (2014). p. JTU3A-2.
- [14] I. Carrasco-Garcia, J.M. Vardillo, J.J. Laserna. Spectrochim. Acta B **113**, 30 (2015).
- [15] А.А. Ионин, С.И. Кудряшов, Л.В. Селезнев, Д.В. Синецын, В.Н. Леднев, С.М. Першин. ЖЭТФ **148**, 846 (2015).
- [16] I. Carrasco-García, J.M. Vardillo, J.J. Laserna. Spectrochim. Acta B **131**, 1 (2017).
- [17] Ю.В. Сенатский. Создание и исследование мощного лазера на неодимовом стекле для высокотемпературного нагрева плазмы. Канд. дис. ФИАН, М. (1970). 245 с.
- [18] В.А. Батанов, Ф.В. Бункин, А.М. Прохоров, В.Б. Федоров. ЖЭТФ **63**, 586 (1972).
- [19] В.С. Зуев, Ю.В. Сенатский. Краткие сообщения по физике. **4**, 16 (2015).

- [20] Н.Е. Быковский, С.М. Першин, А.А. Самохин, Ю.В. Сенатский. Квантовая электрон. **46**, 128 (2016).
- [21] Н.А. Иногамов, А.М. Опарин, Ю.В. Петров, Н.В. Шапошников, С.И. Анисимов, Д. фон дер Линде, Ю. Майер-гер-Фен. Письма в ЖЭТФ **69**, 284 (1999).
- [22] С.И. Анисимов, В.В. Жаховский, Н.А. Иногамов, К. Нишихара, Ю.В. Петров, В.А. Хохлов. Математическое моделирование **18**, 11 (2006).
- [23] Н. Такаюта, Т. Магуюта. Appl. Surf. Sci. **261**, 705 (2012).
- [24] Н.Е. Быковский. Препринт ФИАН № 5 (2016).
- [25] Ч. Киттель. Введение в физику твердого тела. Наука. М. (1978). 791 с.
- [26] J. Hohlfeld, S.-S. Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, E. Matthias. Chem. Phys. **251**, 237 (2000).
- [27] С.И. Кудряшов, В.И. Емельянов. Письма в ЖЭТФ **73**, 751 (2001).
- [28] M. Kandyła. Ultrafast dynamics of the laser-induced solid-to-liquid phase transition in aluminum. Dissertation Doctor of Philosophy. Harvard University Cambridge, Massachusetts (2006). 156 p.