——— КРАТКИЕ СООБЩЕНИЯ **——**

УДК 536.2.023; 532.591

ПОВЕДЕНИЕ ТАНТАЛА ВБЛИЗИ КРИТИЧЕСКОЙ ТОЧКИ ПРИ ФЕМТОСЕКУНДНОМ ЛАЗЕРНОМ НАГРЕВЕ

© 2021 г. Е. В. Струлева^{1, *}, П. С. Комаров¹, С. И. Ашитков¹

 1 ФГБУН Объединенный институт высоких температур РАН (ОИВТ РАН), Москва, Россия

*E-mail: struleva.evgenia@yandex.ru

Поступило в редакцию 01.06.2020 г. После доработки 01.06.2020 г. Принято к публикации 20.10.2020 г.

Методом спектральной микроинтерферометрии с пикосекундным разрешением исследована динамика изменения комплексного коэффициента отражения тантала при воздействии фемтосекундными лазерными импульсами умеренной интенсивности. Изучены особенности поведения амплитуды и фазы диагностической волны в режимах откольной и фрагментационной абляции. На основе анализа пикосекундной динамики разлета проведена оценка порога и характерного времени развития взрывного вскипания танталовой мишени.

DOI: 10.31857/S0040364420060228

ВВЕДЕНИЕ

Широкий спектр практического применения лазерной абляции включает в себя микрообработку материалов, очистку и создание функциональных поверхностей, импульсное лазерное осаждение тонких пленок и получение наноразмерных частиц. В зависимости от плотности энергии нагревающего фемтосекундного лазерного импульса (ФЛИ) различают два режима абляции: откольный и фрагментационный. Откольный характер разрушения вещества обусловлен кавитационным процессом образования и роста зародышей паровой фазы в расплаве и абляцией части расплава в виде тонкого слоя в конденсированном состоянии под действием возникающих растягивающих напряжений [1-6]. С ростом плотности энергии механизм удаления вещества изменяется. Нуклеация развивается не только в области отрицательных давлений в волне разряжения в глубине расплава, но и при положительном давлении. Материал поверхностного слоя под действием мощных фемтосекундных импульсов переходит в состояние перегретой жидкости, достигая предела термодинамической устойчивости, и удаление вещества происходит в форме паро-капельной смеси (так называемый фазовый взрыв) [2, 5-9]. Пороговая плотность энергии. разделяющая эти режимы, соответствует нагреву вещества до температур, близких к критической точке.

Особенности фрагментационной абляции теоретически исследовались ранее в ряде работ [5—7] и экспериментально наблюдались на отдельных металлах и полупроводниках [2, 8, 9]. В то же вре-

мя малоизученным остается вопрос об абляции тугоплавких металлов, в частности тантала ($T_3 = 3290 \text{ K}$ в тройной точке), используемого в энергетике, микроэлектронике и медицине.

В данной работе методом спектральной микроинтерферометрии исследовалась динамика расширения поверхностного слоя тантала и изменение его отражательной способности в пикосекундном диапазоне при различном превышении плотностью энергии порога откола. Найдены качественные различия в эволюции абляционного факела в режиме откольной и фрагментационной абляции. Определены характерное время и диапазон энергий, соответствующие развитию взрывного вскипания при фрагментационной абляции.

ЭКСПЕРИМЕНТ

Источником ФЛИ являлась титан-сапфировая лазерная система, входящая в состав ЦКП "Лазерный фемтосекундный комплекс". Лазерная система генерирует фемтосекундные импульсы с энергией до 2 мДж на длине волны 800 нм. В эксперименте *р*-поляризованный лазерный импульс длительностью 60 фс на длине волны излучения 800 нм фокусировался на поверхность мишени под углом 60° линзой с фокусным расстоянием 20 см. Пространственное распределение плотности энергии в фокальном пятне соответствовало гауссову с радиусом 19 мкм по уровню е⁻¹. Для изменения плотности энергии нагревающего и зондирующего импульсов в схеме применялись аттенюаторы, состоящие из полуволновой пластины

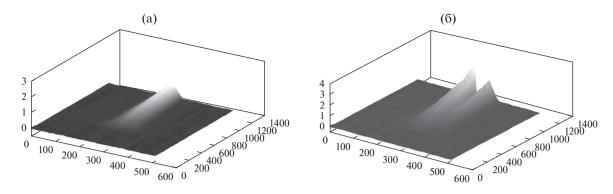


Рис. 1. Пространственно-временные распределения изменения фазы $\Delta \varphi(x,t)$ диагностической волны при различном превышении плотностью энергии порогового значения $F_0/F_{\rm spall}$: (a) -1.4, (б) -3.9.

и призмы Глана. Энергия в каждом импульсе измерялась калиброванным фотодиодом.

В качестве экспериментального образца использовалась пленка тантала толщиной 1300 нм, нанесенная на стеклянную подложку методом магнетронного напыления.

Для диагностики часть чирпированного импульса длительностью 300 пс с шириной спектра 40 нм и центральной длиной волны $\lambda_0 = 800$ нм отводилась из лазерного тракта перед компрессором. В экспериментальной схеме был собран интерферометр Майкельсона, совмещенный с дифракционным спектрометром Solar MS3504i. Спектрометр мог работать как в режиме регистрации спектров, так и в режиме переноса изображения при установке зеркала. Применяемая методика измерений обеспечивала непрерывную регистрацию динамики процесса во временном интервале $\Delta t = 0 - 200$ пс с временным разрешением $\delta t \approx 2$ пс. Более подробно экспериментальная схема и методика измерений описана в работах [10, 11].

Применяемый алгоритм фурье-анализа двумерных интерферограмм [12, 13] с процедурой нормировки временного кадра на начальный (невозмущенная поверхность) обеспечивает погрешность определения изменения фазы диагностического импульса на уровне $\delta \phi \approx 0.02$ рад, что соответствует погрешности определения величины смещения поверхности на уровне $\delta z \approx (1-2)$ нм, а также изменения коэффициента отражения с точностью $\delta R \approx (1-2)\%$.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Порог откольной абляции по падающей плотности энергии определен с помощью методики, описанной в [14] (спектрометр в данном случае переключался в режим переноса изображения поверхности путем смены дифракционной решетки на зеркало при повороте турели). Пороговая плот-

ность энергии составила $F_{\rm spall}=0.36\pm0.04~{\rm Дж/cm^2}.$ Измеренное вблизи абляционного порога значение коэффициента отражения, как отношение энергии отраженной от образца к энергии падающей, составило R=0.42.

На рис. 1 показаны пространственно-временные распределения изменения фазы $\Delta \varphi(x,t)$ диагностической волны, полученные после обработки интерферограмм, при двух различных значениях относительной плотности энергии $\Phi \Pi H$ $F_0/F_{\rm spall}$ (F_0 — значение в центре фокального пятна). Положительный сдвиг фазы на графиках соответствует расширению вещества мишени. Масштаб по осям X и t соответственно составляет 0.4 мкм/пкс и 0.167 пс/пкс.

Куполообразная форма расширения вещества на рис. Іа характерна для разлета откольной пластины при термомеханической абляции. Однако при увеличении плотности энергии (рис. 1б) на пространственно-временном распределении фазы возникает особенность в виде "провала", связанного с развитием фрагментационной абляции, что обсуждается ниже.

На рис. 2 представлены временные зависимости изменения фазы $\Delta \varphi(t)$, характеризующие динамику расширения поверхностного слоя тантала после воздействия $\Phi ЛИ$ с различными плотностями энергии. Зависимости $\Delta \varphi(t)$ сопоставляются с динамикой изменения коэффициента отражения $R(t)/R_0$, где R_0 — исходное значение коэффициента отражения вне области лазерного воздействия. Временные профили на рис. 2 соответствуют центральной части области взаимодействия.

На рис. 2 при $F_0=1.4F_{\rm spall}$ (кривая I') наблюдается монотонное изменение фазы $d\phi/dt>0$ на всем временном интервале измерений. Отражательная способность (кривая I') при этом снижается не более чем на I'0 относительно на-

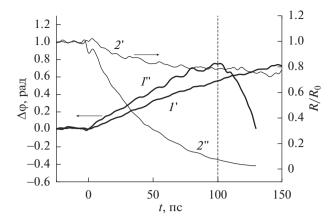


Рис. 2. Графики зависимостей изменения фазы $\Delta \varphi(t)$ (*1*) и коэффициента отражения $R(t)/R_0$ (*2*) при: I', $2' - F_0/F_{\rm spall} = 1.4$; I'', 2'' - 3.9.

чального значения R_0 . Наблюдаемое поведение $\Delta \phi(t)$ и R(t) характерно для термомеханической (откольной) абляции, при которой выброс вещества происходит в виде конденсированного слоя с плотностью, превышающей критическое значение, и резким градиентом на границе с воздухом [6]. Максимальная величина смещения границы слоя, согласно выражению $z = \Delta \phi \lambda / 4\pi$, при этом составляет 47 нм.

При плотности энергии $F_0 = 3.9 F_{\rm spall}$ (кривая I") в отличие от предыдущего случая при задержке примерно 100 пс наблюдается изменение знака производной $d\phi/dt$ с "плюса" на "минус". При этом с течением времени коэффициент отражения резко уменьшается почти до нулевых значений (кривая 2"). При $t \ge 120$ пс наблюдается исчезновение интерференционных полос в центральной части области взаимодействия, что делает невозможным обработку интерферограмм на таких временах.

Из рис. 2 следует, что средняя скорость смещения границы мишени на начальном участке в интервале $0 < t \le 20$ пс при $F_0 = 3.9 F_{\rm spall}$ составляет 0.63 км/с. Это более чем в полтора раза превосходит значение для $F_0 = 1.4 F_{\rm spall}$, равное 0.39 км/с.

Согласно грубым оценкам, выполненным в работе [16], температура тантала вблизи порога $F_{\rm spall}$ равна $T_i \approx 5$ кK, что примерно в полтора раза превосходит его температуру плавления в равновесных условиях $T_{\rm melt} = 3269$ K [17], но существенно ниже температуры критической точки $T_c \approx 12.6$ кK [18, 19]. При этом согласно [15] для тантала соотношение порогов $F_{\rm frag}/F_{\rm spall} \approx 2.6$, и температура поверхности вблизи $F_{\rm frag}$ должна быть близка к критической. Отсюда естественно считать, что непосредственно вблизи порога $F_{\rm frag}$

изоэнтропа расширения тантала проходит ниже критической точки, что ведет к взрывному вскипанию поверхностного слоя.

Анализ результатов измерений динамики расширения танталовой мишени свидетельствует о том, что порог фрагментационной абляции лежит в интервале $1.4F_{\rm spall} < F_{\rm frag} \le 3.9F_{\rm spall}$, что согласуется с данными работы [15]. При этом при максимальном значении флюенса $\bar{F}_0 \approx 3.9 F_{\rm spall} \approx 1.5 F_{\rm frag}$ начальная температура поверхностного слоя может в полтора раза превышать критическую. Наблюдаемое в эксперименте немонотонное изменение фазы и падение отражения на временах ~10-10 с может быть связано с взрывным вскипанием при расширения флюида в случае прохождения изоэнтропы ниже T_c . В то же время не исключена возможность расширения флюида по сверхкритической изоэнтропе с пересечением паровой ветви бинодали, сопровождаемое интенсивным испарением и сильным возмущением поверхности. Ответы на данные вопросы требуют проведения более детальных исследований и компьютерного моделирования.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Интерферометрическим методом непрерывной регистрации с пикосекундным временным разрешением исследованы динамика движения поверхности и изменение коэффициента отражения пленочного образца тантала, инициируемые воздействием импульсов фемтосекундного лазера. Оценены значения порогов и характерных скоростей разлета мишени в режимах откольной и фрагментационной абляции. В отличие от режима откольной абляции наблюдаемые на временах 10^{-10} с немонотонное изменение фазы и резкое уменьшение отражения может быть связано с образованием паровой фазы или сильно рассеивающей паро-капельной смеси при изоэнтропическом расширении флюида в окрестности критической точки при фрагментационной абляции.

Работа выполнена на оборудовании ЦКП "Фемтосекундный лазерный комплекс" ОИВТ РАН при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение с ОИВТ РАН № 075-15-2020-785 от 23 сентября 2020 г.).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Анисимов С.И., Лукьянчук Б.С. Избранные задачи теории лазерной абляции // УФН. 2002. Т. 172. № 3. С. 301.
- Sokolowski-Tinten K., Bialkowski J., Cavalleri A., von der Linde D., Oparin A., Meyer-ter-Vehn J., Anisimov S.I. Transient States of Matter During Short Pulse Laser Ablation // Phys. Rew. Lett. 1998. V. 81. P. 224.

- 3. Bulgakova N.M., Stoian R., Rosenfeld A., Hertel I.V., Campbell E.B. Electronic Transport and Consequences for Material Removal in Ultrafast Pulsed Laser Ablation of Materials // Phys. Rev. B. 2004. V. 69. 054102.
- 4. Agranat M.B., Anisimov S.I., Ashitkov S.I., Zhakhovskii V.V., Inogamov N.A., Nishihara K., Petrov Yu.V., Khokhlov V.A., Fortov V.E. Dynamics of Plume and Crater Formation after Action of Femtosecond Laser Pulse // Appl. Surf. Sci. 2007. V. 253. Is. 15. P. 6276.
- Povarnitsyn M.E., Itina T.E., Sentis M., Khishchenko K.V., Levashov P.R. Material Decomposition Mechanisms in Femtosecond Laser Interactions with Metals // Phys. Rev. B. 2007. V. 75. № 23. P. 235414.
- 6. Иногамов Н.А., Жаховский В.В., Ашитков С.И., Петров Ю.В., Агранат М.Б., Анисимов С.И., Нишихара К., Фортов В.Е. О наноотколе после воздействия ультракороткого лазерного импульса // ЖЭТФ. 2008. Т. 134. Вып. 1. С. 5.
- Zhigilei L.V., Lin Z., Ivanov D.S. Atomistic Modeling of Short Pulse Laser Ablation of Metals: Connections between Melting, Spallation, and Phase Explosion // J. Phys. Chem. C. 2009. V. 113. № 27. P. 11892.
- 8. *Ионин А.А., Кудряшов С.И., Самохин А.А.* Абляция поверхности материалов под действием ультракоротких лазерных импульсов // УФН. 2017. Т. 187. № 2. С. 159.
- 9. *Ионин А.А., Кудряшов С.И., Селезнев Л.В., Синицын Д.В.* Динамика откольной абляции поверхности GaAs под действием фемтосекундных лазерных импульсов // Письма в ЖЭТФ. 2011. Т. 94. Вып. 10. С. 816.
- 10. Ашитков С.И., Комаров П.С., Овчинников А.В., Струлёва Е.В., Жаховский В.В., Иногамов Н.А., Агранат М.Б. Абляция металлов и образование наноструктур под действием фемтосекундных лазерных импульсов // Квантовая электроника. 2014. Т. 44. № 6. С. 535.
- 11. *Струлёва Е.В., Комаров П.С., Ашитков С.И.* Интерферометрическая диагностика нанодеформаций

- поверхности мишени в пикосекундном диапазоне при импульсном лазерном воздействии // Вестник Объединенного института высоких температур. 2018. Т. 1. № 1. С. 130.
- 12. *Temnov V.V.*, *Sokolowski-Tinten K.*, *Zhou P.*, *Von der Linde D.* Ultrafast Imaging Interferometry at Femtosecond-Laser-Excited Surfaces // J. Opt. Soc. Am. B. 2006. V. 23. № 9. P. 1954.
- 13. Агранат М.Б., Андреев Н.Е., Ашитков С.И., Вейсман М.Е., Левашов П.Р., Овчинников А.В., Ситников Д.С., Фортов В.Е., Хищенко К.В. Определение транспортных и оптических свойств неидеальной плазмы твердотельной плотности при фемтосекундном лазерном воздействии // Письма в ЖЭТФ. 2007. Т. 85. Вып. 6. С. 328.
- 14. *Liu J.M.* Simple Technique for Measurements of Pulsed Gaussian-Beam Spot Sizes // Opt. Lett. 1982. V. 7. № 5. P. 196.
- 15. *Струлёва Е.В., Комаров П.С., Ашитков С.И.* Особенности абляции тантала при фемтосекундном лазерном воздействии // ТВТ. 2018. Т. 56. № 5. С. 672.
- Ashitkov S.I., Komarov P.S., Struleva E.V., Inogamov N.A., Agranat M.B., Kanel G.I., Khishchenko K.V. The Behavior of Tantalum under Ultrashort Loads Induced by Femtosecond Laser // J. Phys.: Conf. Ser. 2015. V. 653. 012001.
- Кикоин И.К. Таблица физических величин. Спр. М.: Атомиздат, 1976. 177 с.
- Фортов В.Е., Дремин А.Н., Леонтьев А.А. Оценка параметров критической точки // ТВТ. 1975. Т. 13. № 5. С. 1072.
- 19. *Ohse R.W., Tippelskirch H.* The Critical Constants of the Elements and Some Refractory Materials with High Critical Temperatures // High Temp.—High Press. 1977. V. 9. P. 367.