

ФЕМТОСЕКУНДНАЯ ЛАЗЕРНАЯ АБЛЯЦИЯ ЖЕЛЕЗА

© 2021 г. Е. В. Струлева¹, *, П. С. Комаров¹,
С. А. Ромашевский¹, С. А. Евлашин², С. И. Ашитков¹

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

²Сколковский институт науки и технологий, Москва, Россия

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

Поступила в редакцию 23.05.2021 г.

После доработки 06.10.2021 г.

Принята к публикации 28.10.2021 г.

Методом интерференционной микроскопии исследованы особенности абляции железа при однократном воздействии лазерных импульсов длительностью 60 фс умеренной интенсивности 10^{12} – 10^{13} Вт/см². Измерена величина коэффициента отражения и определено значение порога термомеханической абляции по поглощенной плотности энергии. Исследованы эволюция морфологии дна кратеров и зависимость их глубины от плотности энергии лазерных импульсов.

DOI: 10.31857/S0040364421050197

ВВЕДЕНИЕ

Фемтосекундные лазерные импульсы (ФЛИ) используются для решения широкого круга задач, как фундаментальных, так и прикладных, включая: сверление, очистку поверхности от загрязнений, прецизионное послойное удаление материала, наноструктурирование поверхности и т.п. [1–9]. В результате воздействия фемтосекундными лазерными импульсами на конденсированные среды возникает комплекс качественно новых явлений. В случае металлов при ультракороткой длительности импульса возникает уникальное двухтемпературное состояние, характеризующееся горячей электронной и холодной ионной подсистемами. После передачи энергии от электронной подсистемы к ионной и переноса тепла в глубь мишени происходит объемное плавление поверхностного слоя. Плавление сопровождается акустическими явлениями: зарождением волн сжатия и разрежения, формированием ударной волны, возникновением мощных растягивающих напряжений. Действие растягивающих напряжений вызывает кавитационное разрушение в расплаве с последующим отрывом и разлетом части жидкого слоя в виде откольной пластины (термомеханическая абляция) [10–22]. В результате на поверхности металла образуется абляционный кратер с характерной наноструктурированной поверхностью [5–9].

Параметры, описывающие теплообмен и транспорт энергии в двухтемпературном состоянии, в настоящее время определены неокончательно. Теоретические модели о зависимости указанных параметров от электронной и ионной температур до сих пор остаются неподтвержденными экспериментально. В данной работе эксперимен-

ты проведены в режиме однократного воздействия с применением прецизионной интерферометрической методики измерений с нанометрическим пространственным разрешением. Такие измерения обладают рядом преимуществ относительно экспериментов по многоимпульсному лазерному воздействию [23], в частности, отсутствует необходимость учитывать изменения свойств поверхностного слоя, модифицированного в процессе воздействия.

В настоящей статье представлены новые экспериментальные результаты о фемтосекундной лазерной абляции железа. Получены не только данные о величине порога откольной абляции железа по поглощенной плотности энергии при однократном измерении, но и об особенностях морфологии и нанорельефа поверхности кратеров при различном превышении плотности энергии над пороговым значением в диапазоне 1.4–11.5 раз.

Полученные экспериментальные данные представляют интерес для тестирования и корректировки теоретических моделей взаимодействия ультракоротких лазерных импульсов с металлом, а также могут быть применены для развития методики прецизионной лазерной обработки и наноструктурирования поверхности материалов.

ЭКСПЕРИМЕНТ

Для исследования порога абляции и морфологии кратеров была применена *ripnr-probe*-методика фемтосекундной интерференционной микроскопии, которая позволяет регистрировать пространственные распределения фазы отраженной волны от поверхности образца. Методика интерференционной микроскопии обеспечивает про-

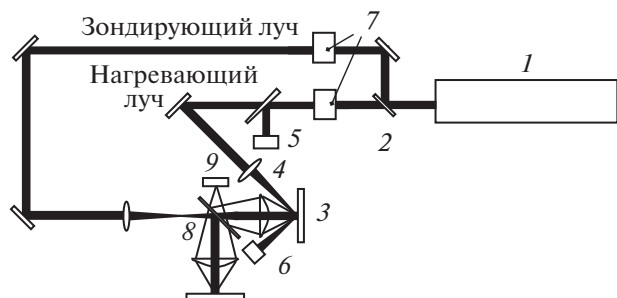


Рис. 1. Экспериментальная схема: 1 – фемтосекундная лазерная система, 2 – светоделительная пластинка, 3 – мишень, 4 – фокусирующая линза, 5 – фотодиод, 6 – калориметр, 7 – поляризационные ослабители, 8 – интерферометр Майкельсона, 9 – ПЗС-камера.

пространственное разрешение в плоскости мишени 2 мкм и разрешение по глубине 1 нм. Для детального исследования морфологии рельефа модифицированной поверхности использовалась сканирующая электронная микроскопия (СЭМ). Экспериментальная схема измерений приведена на рис. 1. Источником ФЛИ являлась титан-сапфировая лазерная система 1, входящая в состав ЦКП “Лазерный фемтосекундный комплекс”, генерирующая импульсы длительностью 60 фс на длине волны $\lambda_1 = 800$ нм с энергией до 2 мДж. Лазерный луч с помощью светоделительной пластины 2 делился на мощный нагревающий и слабый зондирующий, используемый для измерения величины смещения нагреваемой поверхности. Нагревающий p -поляризованный лазерный импульс падал на поверхность мишени 3 под углом 45° . Луч фокусировался линзой 4 с фокусным расстоянием $f = 30$ см. Для измерения падающей и отраженной от мишени энергии ФЛИ в каждом выстреле применялись калиброванный фотодиод 5 и калориметр Sigma 6 соответственно. Плавная регулировка мощности нагревающего и зондирующего импульсов осуществлялась с помощью поляризационных ослабителей 7.

Измерительный узел представлял собой интерферометр Майкельсона 8, в котором для переноса изображения поверхности мишени в плоскость ПЗС-матрицы 9 использовался микрообъектив с числовой апертурой $NA = 0.2$. Эксперименты проводились на воздухе.

В качестве мишени использовалась пленка железа толщиной 500 нм, нанесенная методом магнетронного напыления на стеклянную подложку. После каждого воздействия нагревающего импульса мишень сдвигалась на новое место с помощью трехкоординатного микротранслятора. В каждом опыте записывались две интерферограммы: начальная (невозмущенной поверхности до воздействия) и конечная (спустя несколько секунд после воздействия).

Интерферограммы обрабатывались с помощью алгоритма двумерного фурье-анализа и процедуры нормировки изображений. Результатом обработки являются пространственные распределения изменения амплитуды и фазы отраженной волны зондирующего излучения, что дает информацию об остаточных изменениях оптических свойств и морфологии поверхности в области нагрева после лазерного воздействия.

Смещение поверхности Δz связано с изменением фазы $\Delta\phi$ соотношением $\Delta z = \Delta\phi\lambda_2/4\pi$, где λ_2 – длина волны зондирующего импульса. Более подробно методика измерений и обработка интерферограмм описана в работах [24–26].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Значения порога абляции для железа и пространственный параметр пучка были получены с помощью стандартной методики для лазерных импульсов с гауссовым распределением интенсивности по сечению пучка [27]. На рис. 2 приведены результаты измерения порога образования кратера на поверхности мишени. На графике отображены зависимости квадратов радиусов эллиптического кратера вдоль большой r_x^2 (1) и малой r_y^2 (2) осей от логарифма падающей энергии лазерного импульса E . Точка пересечения прямых, аппроксимирующих экспериментальные значения (маркеры), с осью абсцисс соответствует значению пороговой энергии импульса $E_{abl} = 3.7 \pm 0.3$ мкДж. Углы наклона аппроксимирующих прямых определяют пространственный параметр гауссова распределения $r_{0x} = 31$ мкм и $r_{0y} = 20$ мкм по уровню e^{-1} . Полученное значение порога абляции железа по падающей плотности энергии для наклонного падения p -поляризованного излучения на длине волны 800 нм составило $F_{abl} = E_{abl}/(\pi r_{0x} r_{0y}) \approx 0.2$ Дж/см².

На рис. 3 приведены результаты измерения энергетического коэффициента отражения нагревающего импульса $R = E_{refl}/E$ от мишени в зависимости от плотности энергии ФЛИ. Здесь E и

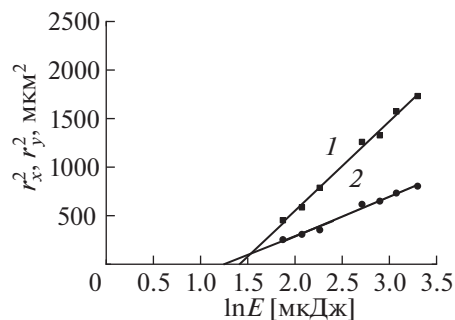


Рис. 2. Определение порога абляции железа.

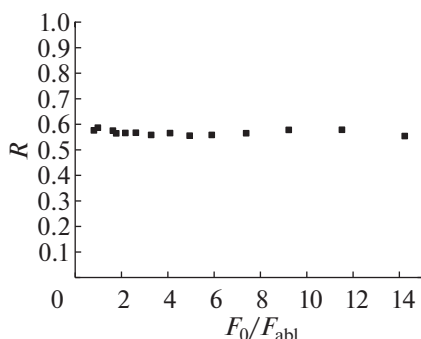


Рис. 3. Зависимость коэффициента отражения импульса накачки от превышения над порогом абляции железа.

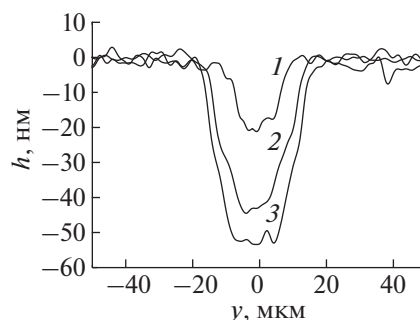


Рис. 4. Профили кратеров при различном превышении плотности энергии лазерного импульса порога абляции для железа F_0/F_{abl} : 1 – 1.8, 2 – 5.9, 3 – 9.2.

E_{refl} – соответственно энергии падающего и отраженного импульсов, измеренные с помощью калиброванного фотоприемника и калориметра.

Измеренное значение коэффициента отражения железа вблизи порога абляции составило $R \approx 0.57$. При этом значение порога абляции пленочного образца железа по поглощенной плотности энергии равно $F^{abs} = (1 - R)F_{abl} = 0.09$ Дж/см².

Семейство профилей кратеров для железа в случае превышения плотностью энергии порогового значения в диапазоне 1.8–9.2 раз представлены на рис. 4. На всех профилях заметны резкие вертикальные границы кратера (ступенька), несмотря на гауссово распределение плотности энергии лазерного импульса, что указывает на откольный характер разрушения в расплаве железа после воздействия ФЛИ.

Графики зависимости глубины в центре кратера h от превышения плотности энергии нагревающего импульса порогового значения показаны на рис. 5. Каждая точка получена путем измерения глубины h в центре кратера после воздействия импульсом с различной энергией. На графике наблюдается монотонный рост глубины кратера с увеличением плотности энергии ФЛИ. Глубина кратера меняется от 16 до 55 нм в диапазоне $1.4 < F_0/F_{abl} < 11.5$.

Следует отметить, что поверхность дна кратеров при фемтосекундной абляции покрыта наноструктурами и является сильно шероховатой. Микроинтерферометрия из-за недостаточного пространственного разрешения в плоскости мишени не фиксирует отдельные структуры, а регистрирует осредненную, эффективную глубину рельефа h , которая изображена на графике (рис. 5).

Далее было выполнено детальное исследование структурированной поверхности дна кратеров с нанометрическим разрешением с помощью сканирующей электронной микроскопии. Исследовалась морфология поверхности кратеров, образовав-

шихся на поверхности пленочного образца железа после однократного воздействия лазерных импульсов длительностью 60 фс на длине волны 800 нм при различных $F_0 > F_{abl}$. На рис. 6 приведены СЭМ-изображения фрагмента центральной части кратеров с одинаковым увеличением.

Морфология поверхности дна абляционных кратеров (рис. 6) представлена хаотическими разветвленными структурами в виде многогранников с наносферами в узлах ячеек, сформированными за счет поверхностного натяжения. Структуры являются застывшими разорванными ячейками нанопены, характерными для термомеханической абляции металла, образующимися в расплаве под действием растягивающих напряжений. Размер сферических наночастиц в диаметре составляет 20–50 нм при $F_0/F_{abl} = 1.8$, 50–120 нм при $F_0/F_{abl} = 5$, 70–150 нм при $F_0/F_{abl} = 9.2$. При $F_0/F_{abl} \geq 5$ также наблюдается осаждение на поверхности продуктов абляции в виде наносфер, размер которых варьируется от единиц до нескольких десятков нанометров.

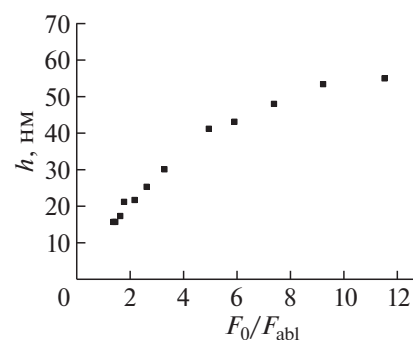


Рис. 5. Зависимость глубин кратеров h от превышения плотности энергии нагревающего импульса порогового значения F_0/F_{abl} для железа.

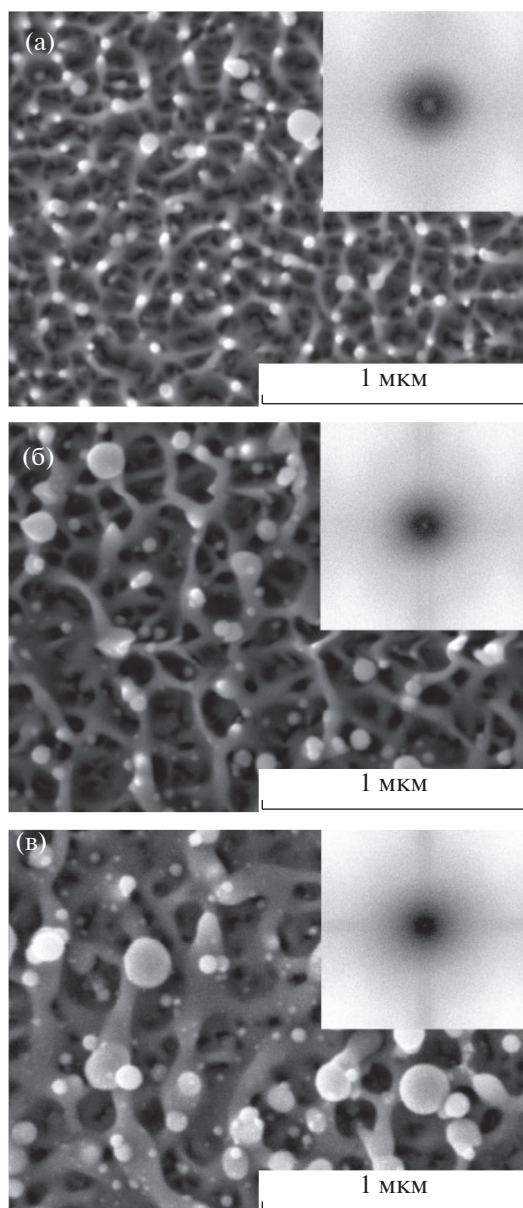


Рис. 6. СЭМ-изображения фрагментов поверхности дна абляционных кратеров в центральной части при различных значениях F_0/F_{abl} : (а) – 1.8, (б) – 5, (в) – 9.2; на вставке – пространственные фурье-спектры СЭМ-изображений модифицированных поверхностей.

На вставке рис. 6 представлены пространственные фурье-спектры СЭМ-изображений модифицированных поверхностей железа. Наблюдаемая радиальная симметричность спектров свидетельствует о хаотичности и отсутствии выделенных направлений в расположении структур, сформированных на дне кратеров. На рис. 7 приведены соответствующие профили сечения данных спектров (здесь A – амплитуда, X – пространственная частота).

Характерный размер ячеистых наноструктур, образующихся на поверхности металлов в резуль-

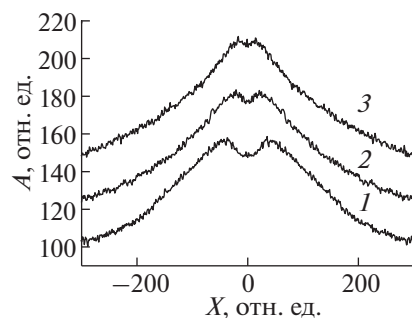


Рис. 7. Спектры пространственных частот наноструктур при различных значениях F_0/F_{abl} : 1 – 1.8, 2 – 5.9, 3 – 9.2.

тате термомеханической абляции при однократном воздействии ФЛИ, зависит от их термодинамических свойств и параметров лазерных импульсов [8, 9]. Размер ячеек и толщина стенок также имеют тенденцию к росту с увеличением плотности энергии ФЛИ, что связано с ростом глубины прогрева и уменьшением коэффициента поверхностного натяжения расплава с ростом температуры [8]. Приведенные спектры пространственных частот свидетельствуют об увеличении среднего размера наноструктур с ростом флюенса. Характерные размеры ячеек при этом составляют 80–150 нм при $F_0/F_{abl} = 1.8$, 150–200 нм при $F_0/F_{abl} = 5$, 150–300 нм при $F_0/F_{abl} = 9.2$. Молекулярно-динамическое моделирование дает более полную картину процессов кавитации в расплаве и формирования наноструктур на поверхности абляционного кратера [8].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом оптической интерференционной микроскопии проведено исследование абляции железа при фемтосекундном лазерном воздействии. Результаты измерения порога абляции, морфологии и нанорельефа поверхности кратеров указывают на откольный характер разрушения вещества в конденсированном состоянии, обусловленный кавитационным процессом образования и роста зародышей паровой фазы при растяжении расплава. Измеренный порог откольной абляции железа по поглощенной плотности энергии при однократном воздействии ФЛИ составил $F^{abs} = 0.09$ Дж/см². С увеличением флюенса наблюдается рост глубины абляционных кратеров и характерных размеров хаотических разветвленных структур на дне. Измерена зависимость изменения глубины абляционных кратеров от плотности энергии ФЛИ.

Работа поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (госзадание № 075-00892-20-00). Эксперименты выполнены на оборудовании ЦКП “Лазерный фемтосекундный комплекс” ОИВТ РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Zhao X., Shin Y.C. Femtosecond Laser Ablation of Aluminum in Vacuum and Air at High Laser Intensity // *Appl. Surf. Sci.* 2013. V. 283. P. 94.
2. Meunier M., Fiset B., Houle A., Kabashin A.V., Broude S.V., Miller P. Processing of Metals and Semiconductors by a Femtosecond Laser-Based Microfabrication System // *SPIE Proc.* 2003. V. 6. P. 4978.
3. Локтионов Е.Ю., Овчинников А.В., Протасов Ю.Ю., Ситников Д.С. О спектрально-энергетической эффективности фемтосекундной лазерной абляции полимеров // *Докл. РАН.* 2010. Т. 434. № 1. С. 38.
4. Локтионов Е.Ю., Овчинников А.В., Протасов Ю.С., Протасов Ю.Ю., Ситников Д.С. Исследование оптико-механических характеристик процессов взаимодействия ультракоротких импульсов лазерного излучения с полимерными материалами // *Оптика и спектроскопия.* 2012. Т. 112. № 4. С. 685.
5. 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.
6. Vorobyev A.Y., Guo C. Enhanced Absorptance of Gold Following Multipulse Femtosecond Laser Ablation // *Phys. Rev. B.* 2005. V. 72. P. 195422.
7. Romashevskiy S.A., Agranat M.B., Dmitriev A.S. Thermal Training of Functional Surfaces Fabricated with Femtosecond Laser Pulses // *High Temp.* 2016. V. 54. № 3. P. 461.
8. Ашитков С.И., Ромашевский С.А., Комаров П.С., Бурмистров А.А., Жаховский В.В., Иногамов Н.А., Агранат М.Б. Образование наноструктур при фемтосекундной лазерной абляции металлов // *Квантовая электроника.* 2015. Т. 45. № 6. С. 547.
9. Romashevskiy S.A., Ashitkov S.I., Agranat M.B. Femtosecond Laser Technology for Solid-State Material Processing: Creation of Functional Surfaces and Selective Modification of Nanoscale Layers // *High Temp.* 2018. V. 56. № 4. P. 587.
10. Анисимов С.И., Лукьянчук Б.С. Избранные задачи теории лазерной абляции // *УФН.* 2002. Т. 172. № 3. С. 301.
11. 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. Rev. Lett.* 1998. V. 81. P. 224.
12. 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. P. 054102.
13. 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. Iss. 15. P. 6276.
14. Иногамов Н.А., Жаховский В.В., Ашитков С.И., Петров Ю.В., Агранат М.Б., Анисимов С.И., Ниши-хара К., Фортвов В.Е. О наноотколе после воздействия ультракороткого лазерного импульса // *ЖЭТФ.* 2008. Т. 134. № 1. С. 5.
15. Струлёва Е.В., Комаров П.С., Ашитков С.И. Особенности абляции тантала при фемтосекундном лазерном воздействии // *ТВТ.* 2018. Т. 56. № 5. С. 672.
16. Ashitkov S.I., Komarov P.S., Struleva E.V., 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. P. 012001.
17. Ашитков С.И., Комаров П.С., Овчинников А.В., Струлёва Е.В., Агранат М.Б. Прочность жидкого олова в условиях предельно высоких скоростей деформации при фемтосекундном лазерном воздействии // *Письма в ЖЭТФ.* 2016. Т. 103. № 8. С. 611.
18. Ashitkov S.I., Komarov P.S., Struleva E.V., Inogamov N.A., Agranat M.B. Laser Ablation of Tantalum, Two-Temperature Physics and Strength of Melt // *J. Phys.: Conf. Ser.* 2018. V. 946. 012002.
19. Ашитков С.И., Иногамов Н.А., Жаховский В.В., Эмиров Ю.Н., Агранат М.Б., Олейник И.И., Анисимов С.И., Фортвов В.Е. Образование нанополостей в поверхностном слое алюминиевой мишени при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов // *Письма в ЖЭТФ.* 2012. Т. 95. № 4. С. 192.
20. Струлёва Е.В., Комаров П.С., Ашитков С.И. Сравнение фемтосекундной лазерной абляции золота и никеля // *ТВТ.* 2019. Т. 57. № 5. С. 659.
21. Ivanov D.S., Zhigilei L.V. Combined Atomistic-Continuum Modeling of Short-Pulse Laser Melting and Disintegration of Metal Films // *Phys. Rev. B.* 2003. V. 68. P. 064114.
22. 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.
23. Gdde J., Hohlfeld J., Mller J.G., Matthias E. Damage Threshold Dependence on Electron-Phonon Coupling in Au and Ni Films // *Appl. Surf. Sci.* 1998. V. 127. P. 40.
24. 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.
25. Агранат М.Б., Андреев Н.Е., Ашитков С.И., Вейсман М.Е., Левашов П.Р., Овчинников А.В., Ситников Д.С., Фортвов 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.
26. Inogamov N.A., Zhakhovskii V.V., Ashitkov S.I., Khokhlov V.A., Petrov Yu.V., Komarov P.S., Agranat M.B., Anisimov S.I., Nishihara K. Two-Temperature Relaxation and Melting After Absorption of Femtosecond Laser Pulse // *Appl. Surf. Sci.* 2009. V. 255. № 24. P. 9712.
27. Liu J.M. Simple Technique for Measurements of Pulsed Gaussian-Beam Spot Sizes // *Opt. Lett.* 1982. V. 7. № 5. P. 196.