

# Тепловая абляция пленки алюминия при поглощении фемтосекундного импульса лазерного излучения

С.Г.Бежанов, А.П.Канавин, С.А.Урюпин

*Найдена зависимость от времени глубины абляции алюминия, взаимодействующего с фемтосекундным импульсом лазерного излучения. Показано, в какой мере увеличение плотности потока энергии излучения ведет к росту квазистационарного значения глубины абляции. При уменьшении толщины пленки алюминия до ста нанометров и менее глубина абляции заметно возрастает. При этом установление квазистационарного значения глубины абляции тонкой пленки происходит вследствие выноса тепла из области фокального пятна.*

**Ключевые слова:** фемтосекундный импульс, металлическая нанопленка, лазерная абляция, алюминий.

## 1. Введение

Экспериментальному и теоретическому изучению абляции металлов при поглощении импульсов лазерного излучения посвящено достаточно много работ (см., напр., [1–5] и обзор [6]). Установлено существенное различие процессов абляции массивных образцов при воздействии фемто-, пико- и наносекундных импульсов [2, 3]. Такое различие возникает из-за изменения соотношения между временем воздействия импульса и временами нагрева и охлаждения поверхности металла. Поскольку два последних времени зависят от размеров образца, то можно ожидать изменения закономерностей абляции в образцах достаточно малых размеров по сравнению с таковыми, присутствующими в массивных образцах. Это положение получило подтверждение в исследованиях абляции тонких пленок металлов [7–10]. В частности, экспериментально обнаружено уменьшение плотности потока энергии излучения, при которой возникает существенная абляция пленок золота, никеля [7, 10] и меди [10] при уменьшении толщины пленки до микрона и менее. В работе [8] определены пороговые плотности потока энергии излучения  $I_{th}$  импульсов длительностью 200 фс, при которых возникает повреждение пленок золота и никеля. Для золота значения  $I_{th}$  возрастают по мере увеличения толщины пленки  $L$  и выходят на насыщение при  $L \approx 500$  нм. Аналогичная зависимость  $I_{th}$  от  $L$  установлена для никеля, только насыщение наступает при  $L \geq 50$  нм, что связано с более эффективной передачей энергии от электронов решетке [8]. Подобная установленная в [8] зависимость  $I_{th}$  от  $L$  выявлена в работе [9], где при воздействии импульсов длитель-

ностью 600 фс на пленки из золота наблюдалось уменьшение  $I_{th}$  при  $L \lesssim 100–200$  нм.

В настоящей работе теоретически исследована глубина тепловой абляции образцов алюминия, взаимодействующих со сравнительно слабым фемтосекундным импульсом, который приводит к удалению небольшого числа атомных слоев вещества. Показано, как с увеличением времени глубина абляции выходит на квазистационарное значение  $d_t$ , зависящее от  $I_L$  – плотности потока энергии воздействующего излучения. Найдена зависимость  $d_t$  от  $I_L$ . Продемонстрировано, как по мере уменьшения толщины пленки возрастает глубина абляции. В достаточно тонких пленках установление квазистационарного значения глубины абляции оказывается возможным при учете фокусировки лазерного излучения. Определены зависимости  $d_t$  от размеров фокального пятна, толщины пленки и параметров алюминия.

## 2. Поглощение излучения и нагрев металла

Рассмотрим взаимодействие с пленкой металла, занимающей область пространства  $0 < z < L$ , лазерного импульса, который распространяется вдоль нормали к поверхности пленки. Поле лазерного излучения в вакууме имеет вид

$$E_{inc} = E_L(t - z/c) \sin(\omega t - kz), \quad z < 0, \quad (1)$$

где  $\omega$  – центральная частота излучения;  $k = \omega/c$  – волновое число;  $c$  – скорость света;  $E_L(t) = (0, E_L(t), 0)$  – огибающая импульса, слабо меняющаяся за время  $\sim 1/\omega$ . Электромагнитное поле проникает в пленку, отражается от поверхности  $z = 0$  и проходит в область  $z > L$ . Проникающее внутрь поле  $E_m = (0, E_m(z, t), 0)$  имеет вид (см. [11])

$$E_m(z, t) \simeq \frac{1}{2i} [\exp(i\omega t) F(z, -\omega) - \exp(-i\omega t) F(z, \omega)] E_L(t), \quad (2)$$

где

$$F(z, \omega) = \frac{2\omega \{ \omega \sinh[\kappa(z - L)] - i\kappa c \cosh[\kappa(z - L)] \}}{(\kappa^2 c^2 - \omega^2) \sinh(\kappa L) - 2i\omega \kappa c \cosh(\kappa L)}; \quad (3)$$

С.Г.Бежанов, С.А.Урюпин. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31; e-mail: urupin@sci.lebedev.ru  
А.П.Канавин. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53

Поступила в редакцию 9 июня 2015 г., после доработки – 26 ноября 2015 г.

$$\kappa^2 = -\frac{\omega^2}{c^2}\varepsilon(\omega); \varepsilon(\omega) = \varepsilon_0(\omega) - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + iv)} = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega); (4)$$

$\varepsilon_0(\omega) = \varepsilon_0'(\omega) + i\varepsilon_0''(\omega)$  – вклад в диэлектрическую проницаемость от связанных электронов;  $\omega_p$  – плазменная частота электронов;  $\nu$  – частота столкновений электронов. Полагая, что при поглощении поля связанные электроны переходят в зону проводимости, для усредненной по периоду  $2\pi/\omega$ , поглощаемой электронами мощности используем выражение [11]:

$$Q(z, t) \simeq \frac{c\varepsilon''(\omega)}{\omega |\varepsilon(\omega)|^2} I_L(t) \left| \frac{\partial F(z, \omega)}{\partial z} \right|^2, (5)$$

где  $I_L(t) = cE_L^2(t)/(8\pi)$  – плотность потока энергии в падающем импульсе.

В основу описания нагрева металла положим уравнение для температур электронов  $T_e(z, t)$  и решетки  $T_{lat}(z, t)$ :

$$C_e(z, t) \frac{\partial}{\partial t} T_e(z, t) = Q(z, t) + \frac{\partial}{\partial z} \left[ \lambda(z, t) \frac{\partial}{\partial z} T_e(z, t) \right] - G(z, t) [T_e(z, t) - T_{lat}(z, t)], (6)$$

$$C_{lat} \frac{\partial}{\partial t} T_{lat}(z, t) = G(z, t) [T_e(z, t) - T_{lat}(z, t)], (7)$$

где  $C_e(z, t)$  – теплоемкость электронов;  $\lambda(z, t)$  – коэффициент теплопроводности;  $G(z, t)$  – параметр, описывающий передачу энергии от электронов решетке;  $C_{lat}$  – теплоемкость решетки.

Уравнения (6), (7) следует дополнить начальными и граничными условиями:

$$T_e(z, t \rightarrow -\infty) = T_{lat}(z, t \rightarrow -\infty) = T_0, (8)$$

$$\lambda(z, t) \frac{\partial}{\partial z} T_e(z, t) \Big|_{z=0} = -\lambda(z, t) \frac{\partial}{\partial z} T_e(z, t) \Big|_{z=L} \simeq 0. (9)$$

При этом считаются несущественными потери тепла из-за термоэмиссии электронов [12].

Закономерности эволюции температур зависят от явного вида функций  $C_e(z, t)$ ,  $G(z, t)$ ,  $\lambda(z, t)$ , которые различны для разных веществ. Далее ограничимся изучением нагрева пленки алюминия, плазменная частота которого  $\omega_p = 1.91 \times 10^{16} \text{ с}^{-1}$  [13]. Примем, что на пленку толщиной  $L$  воздействует импульс лазерного излучения, сфокусированного в пятно радиусом  $R$ , с частотой  $\omega \simeq 2.35 \times 10^{15} \text{ с}^{-1}$ . Зависимость плотности потока энергии излучения от времени представим в виде  $I_L(t) = I_L \exp(-t^2/t_p^2)$ , где  $t_p = \tau/2\sqrt{\ln 2}$ , а  $\tau = 100 \text{ фс}$  – характерная длительность импульса. Отвечающий данной частоте  $\omega$  вклад в диэлектрическую проницаемость от связанных электронов составляет  $\varepsilon_0(\omega) = 8.5 + 41i$ , что в пренебрежении нагревом соответствует коэффициенту поглощения 0.14 [13, 14]. Для теплоемкости решетки алюминия используем  $C_{lat} = 2.4 \times 10^7 \text{ эрг} \cdot \text{см}^{-3} \cdot \text{К}^{-1}$ . В соответствии с данными работы [15] при  $T_e < 6 \times 10^4 \text{ К}$  электронную теплоемкость алюминия аппроксимируем выражением

$$C_e(z, t) = C_{Al} T_e(z, t) \frac{1 + 0.153[10^{-4} T_e(z, t)]}{1 + 0.065[10^{-4} T_e(z, t)]^2}, (10)$$

где  $C_{Al} \simeq 9.1 \times 10^2 \text{ эрг} \cdot \text{см}^{-3} \cdot \text{К}^{-2}$ , а температура измеряется в градусах Кельвина. В свою очередь, принимая во внимание данные работы [16], полученные при  $T_e(z, t) < 2 \times 10^4 \text{ К}$ , для параметра  $G$  используем аппроксимацию:

$$G(z, t) = G_{Al} \times \left\{ 1 - \frac{0.0009}{[10^{-4} T_e(z, t)]^4 + 0.0030} + 0.0028[10^{-4} T_e(z, t)] \right\}, (11)$$

где  $G_{Al} = 3.5 \times 10^{18} \text{ эрг} \cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{К}^{-1} \cdot \text{см}^{-3}$ . В описываемых далее условиях температура электронов превышает 2 эВ в течение нескольких сотен фемтосекунд в достаточно тонком (толщиной 20–30 нм) поверхностном слое, поэтому возможные погрешности вычислений из-за использования выражения (11) малосущественны. Коэффициент теплопроводности в уравнении (6) представим в виде

$$\lambda(z, t) = \frac{C_e(z, t) \bar{v}_s^2}{3\nu(z, t)}, (12)$$

где  $\bar{v}_s^2 = [3v_F^2/5 + 3k_B T_e(z, t)/m]$  – средний квадрат скорости электронов [17];  $v_F = 2.05 \times 10^8 \text{ см/с}$  – скорость Ферми;  $k_B$  – постоянная Больцмана;  $m$  – эффективная масса электрона. Частота столкновений электронов  $\nu(z, t)$ , определяющая теплопроводность, равна сумме электрон-фононной частоты столкновений  $\nu_{ep}$ , зависящей от температуры решетки, и электрон-электронной частоты столкновений  $\nu_{ee}$ , зависящей от температуры электронов:

$$\nu(z, t) = \frac{3}{5} \nu_{ep}(T_{lat}(z, t)) + \nu_{ee}(T_e(z, t)).$$

Появление множителя  $3/5$  связано с отличием  $\bar{v}^2$  от  $v_F^2$  при низких температурах. При температурах решетки, превышающих температуру Дебая, для частоты электрон-фононных столкновений возможна следующая аппроксимация:

$$\nu_{ep}(T_{lat}(z, t)) = \nu_{ep}(T_0) \frac{T_{lat}(z, t)}{T_0}, (13)$$

где  $\nu_{ep}(T_0) = 9.4 \times 10^{13} \text{ с}^{-1}$  – частота столкновений электронов с фононами при комнатной ( $T_0 = 300 \text{ К}$ ) температуре [13]. Такое приближение оправданно, несмотря на то что температура Дебая для алюминия составляет 430 К. Дело в том, что из-за быстрого нагрева в обсуждаемых далее условиях температура решетки достигает  $\sim 430 \text{ К}$  за несколько десятков фемтосекунд. Обычно при температурах электронов, много меньших температуры вырождения, имеет место квадратичная зависимость  $\nu_{ee}$  от  $T_e$ . Однако по мере приближения  $T_e$  к  $\mathcal{E}_F/k_B$ , где  $\mathcal{E}_F = 11.7 \text{ эВ}$  – энергия Ферми, влияние зонной структуры и снятие вырождения приводят к существенному изменению квадратичной зависимости [18]. Полученные в [18] результаты с неплохой точностью аппроксимируются формулой

$$\nu_{ee}[T_e(z, t)] \simeq b \frac{\mathcal{E}_F}{\hbar} \frac{[k_B T_e(z, t)/\mathcal{E}_F]^2}{1 + \alpha [k_B T_e(z, t)/\mathcal{E}_F]^2}, (14)$$

где  $\hbar$  – постоянная Планка;  $b = 1.7$ ;  $\alpha = 15$ . Именно такая зависимость  $\nu_{ee}$  от  $T_e$  используется ниже при решении уравнения (6).

Поглощаемая электронами проводимости мощность (5) также зависит от частоты столкновений. Если  $\nu \ll \omega$ ,

то в формулу (4) входит частота  $\nu = \nu_{\text{opt}}$ , описывающая взаимодействие электронов с высокочастотным полем. Частота  $\nu_{\text{opt}}$  отличается от  $\nu(z, t)$ , входящей в коэффициент теплопроводности (12), и определяется константами  $\nu_{\text{ep}}^{\text{opt}}(T_0) \neq \nu_{\text{ep}}(T_0)$  и  $a \neq b$  (см., напр., [19, 20]), где в условиях не слишком сильного нагрева принято  $a = 0$ ). Вместе с тем, в обсуждаемом далее диапазоне частот на начальной стадии нагрева поглощение связанными электронами, определяемое  $\epsilon_0''(\omega)$ , почти на порядок превышает поглощение из-за столкновений электронов проводимости, определяемое  $\nu_{\text{opt}}$ . Это делает малосущественным учет различия между  $\nu$  и  $\nu_{\text{opt}}$  на этой стадии нагрева. Если же из-за нагрева частота столкновений электронов становится порядка  $\omega$ , то можно применить формулы (13), (14). Именно эти выражения для частот столкновений использовались при решении уравнений (6), (7).

Если температура  $T_{\text{lat}}(z, t)$  достигает температуры плавления алюминия  $T_m = 930$  К, происходит разрушение решетки. При численном решении факт плавления учитывается посредством остановки роста температуры в момент, когда  $T_{\text{lat}}(z, t) = T_m$ , и до тех пор, пока в рассматриваемой точке решетке не будет передана энергия, равная удельной теплоте плавления ( $\Delta H_m = 10.8$  КДж/моль) [21]. Кроме того, частота столкновений электронов в расплаве увеличивается примерно на 50% [22] (ср. [13]), что учитывается температурной зависимостью вида

$$\nu_{\text{ep}}[T_{\text{lat}}(z, t)] = \nu_{\text{ep}}(T_0) \frac{T_{\text{lat}}(z, t)}{T_0} [1 + 0.5\eta(T_{\text{lat}}(z, t) - T_m)], \quad (15)$$

где  $\eta(\dots)$  – единичная ступенчатая функция Хевисайда. Функции  $G(z, t)$  и  $C_e(z, t)$  после плавления принимаются такими же, как и в твердой фазе. Заметим, что при быстром нагреве металла возможен перегрев решетки, когда температура  $T_{\text{lat}}$  превышает  $T_m$ , но разупорядочение не наступает в течение нескольких пикосекунд [23]. Так как масштабы времени, на которых происходит абляция, составляют десятки пикосекунд, то данным эффектом далее пренебрегаем.

Типичные зависимости от времени температур электронов и решетки на поверхности пленки, полученные при решении уравнений (6), (7), приведены на рис.1 для  $I_L = 3 \times 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> и  $L \rightarrow \infty$ ,  $R \rightarrow \infty$ . Видно, что при поглощении излучения электроны быстро нагреваются, а решетка остается сравнительно холодной. После этого за время  $t_* \approx$

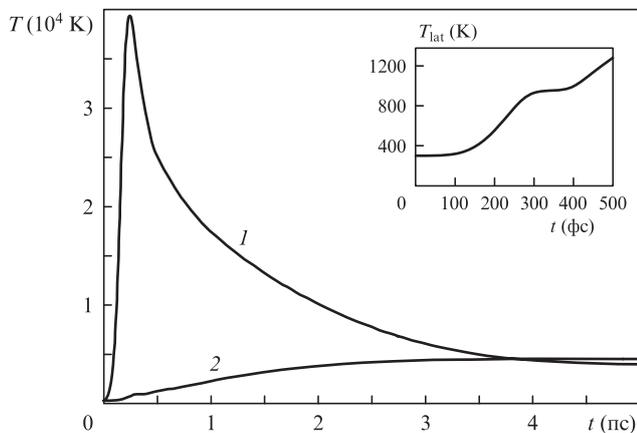


Рис.1. Типичные зависимости температур электронов (1) и решетки (2) от времени на освещенной поверхности образца ( $z = 0$ ). Зависимости построены для  $I_L = 3 \times 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> и достаточно больших  $L$  и  $R$ .

$C_{\text{lat}} T_{\text{lat}}^{\text{max}} / (G_{\text{Al}} T_e^{\text{max}})$ , что составляет несколько пикосекунд, происходит выравнивание температур электронов и решетки. При этом происходит перенос тепла в глубь металла за счет теплопроводности электронов. Отметим, что в обсуждаемых условиях доля энергии, идущая на плавление алюминия, мала по сравнению с полной поглощенной энергией, а процесс плавления происходит достаточно быстро, что видно по короткому горизонтальному участку зависимости  $T_{\text{lat}}(z = 0, t)$  на рис.1.

### 3. Абляция алюминия

Нагрев алюминия сопровождается его абляцией. Для расчета глубины абляции воспользуемся соотношением

$$d(t) = \int_0^t \nu [T_{\text{lat}}(z = 0, t')] \exp\left[-\frac{U_0}{k_B T_{\text{lat}}(z = 0, t')}\right] dt', \quad (16)$$

где для алюминия  $U_0 = \Delta H_b / N_A = 3.05$  эВ – энергия, соответствующая удельной теплоте испарения  $\Delta H_b = 293$  КДж/моль [21];  $N_A$  – число Авогадро; соотношение для скорости  $\nu(T_{\text{lat}})$  см. в Приложении.

На рис.2 приведены зависимости глубины абляции достаточно толстой пленки от времени при различных плотностях потока энергии воздействующего импульса нефокусированного излучения ( $R \rightarrow \infty$ ), т.е. в условиях, когда влияние поперечного теплопереноса несущественно. За несколько десятков пикосекунд происходит испарение алюминия, и примерно через сто пикосекунд глубина абляции выходит на квазистационарное значение  $d_t$ , слабо зависящее от времени. Из рис.3, где приведена зависимость глубины абляции за один импульс от  $I_L$ , виден резкий рост  $d_t$  с увеличением  $I_L$ . При этом один атомный слой алюминия (т.е.  $d_t = 0.4$  нм) отделяется при  $I_L \approx 4.2 \times 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>, что соответствует плотности энергии 420 мДж/см<sup>2</sup>. Это значение близко к установленным ранее для алюминия: 400 [24, 25] и 540 мДж/см<sup>2</sup> [26]. На рис.2, рис.3 и последующих те участки кривых, где  $d_t$  меньше 0.4 нм, изображены штрихами.

На рис.4 представлена зависимость глубины абляции от времени для пленок разной толщины. Обычно в экспериментах пленка располагается на подложке. Вместе с тем, граничное условие при  $z = L$  не учитывает передачу тепла в подложку. Такое приближение оправданно для достаточно толстых пленок или при относительно малой теплопрово-

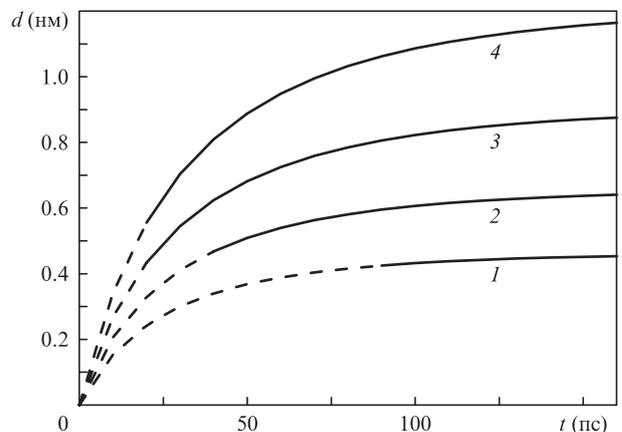


Рис.2. Зависимости глубины абляции от времени для толстой пленки при максимальных плотностях потока энергии излучения  $I_L = 4.2 \times 10^{12}$  (1),  $4.4 \times 10^{12}$  (2),  $4.6 \times 10^{12}$  (3) и  $4.8 \times 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> (4).

дности подложки. Видно, что для пленок толщиной 120 нм перенос тепла в глубь пленки обеспечивает достаточно быстрое остывание, приводящее к выходу  $d(t)$  на квазистационарное значение на временах в несколько десятков пикосекунд. При уменьшении толщины пленки до 100 нм и менее за время порядка 100 пс по всей толщине пленки устанавливается слабонеоднородное распределение температуры, а ее величина оказывается относительно большой. В итоге глубина абляции со временем монотонно возрастает. Для получения квазистационарного значения глубины абляции тонких пленок необходимо, в частности, учитывать теплоперенос в поперечном направлении, который важен при небольших размерах фокального пятна.

В обсуждаемых условиях для алюминия при  $t \approx 2-4$  пс (см. рис.1) происходит выравнивание температур электронов и решетки. Начиная с этого момента времени ( $t = t_*$ ) можно использовать одно уравнение для общей температуры:

$$\frac{\partial T(r, z, t)}{\partial t} = \frac{\lambda_0}{C_{\text{lat}}} \left[ \frac{\partial^2 T(r, z, t)}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial r} \right) \right]. \quad (17)$$

Влияние электрон-электронных столкновений на теплопроводность алюминия при температурах, не превышающих  $4 \times 10^3$  К, несущественно по сравнению с влиянием их столкновений с фононами. Пренебрегая  $v_{\text{ee}}$  и учитывая, что при одинаковых температурах электронов и решетки

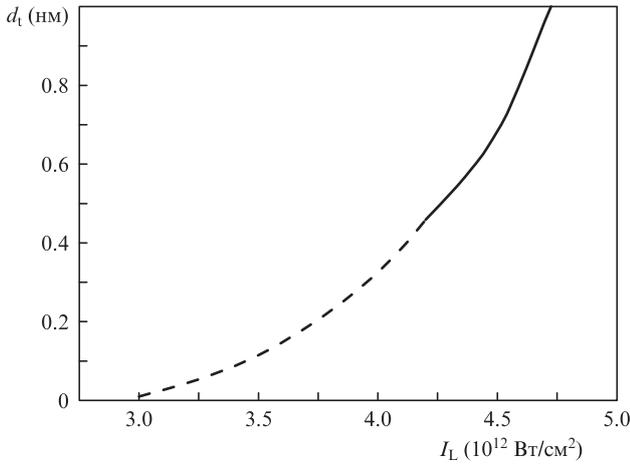


Рис.3. Зависимость глубины абляции за один импульс от максимальной плотности потока энергии в падающем импульсе.

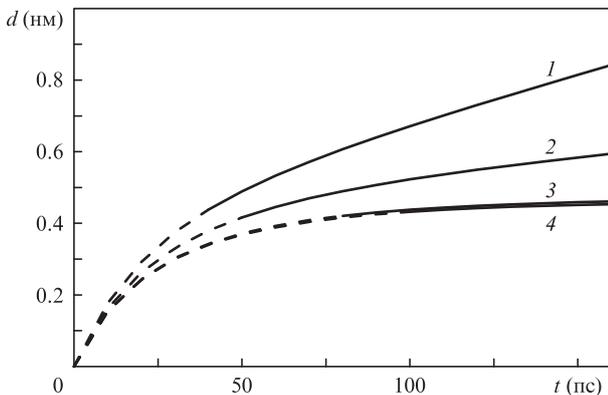


Рис.4. Зависимости глубины абляции от времени для пленок толщиной 100 (1), 120 (2), 200 (3) и 300 нм (4). Максимальная плотность потока энергии  $I_L = 4.2 \times 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>.

и при  $T_{\text{lat}} > T_m$  исчезает зависимость  $\lambda_0$  от температуры (см. (10) и (15)), для коэффициента теплопроводности в (17) имеем  $\lambda_0 = C_{\text{Al}} T_0 v_F^2 / 3v_{\text{ep}}(T_0) = \text{const}$ .

Граничные условия для уравнения (17)

$$\lambda_0 \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} \Big|_{z=0} \simeq 0, \quad -\lambda_0 \frac{\partial T(r, z, t)}{\partial z} \Big|_{z=L} = 0, \quad (18)$$

$$T(z, r \rightarrow \infty, t) = T_0$$

аналогичны использованным ранее (см. (9)). При этом считаются несущественными потери тепла из-за испарительного охлаждения. Соответствующее граничное условие должно учитывать вынос тепла испаряющимися частицами, каждая из которых уносит энергию  $U_0$  (см. [27]). Однако поскольку рассматриваются условия, в которых происходит испарение лишь нескольких атомных слоев вещества, то тепловой поток, уходящий с поверхности металла при его испарении, мал по сравнению с потоком в глубь металла.

Температура в момент времени  $t = t_*$  получается из численного решения уравнений (6), (7) и задается в виде функции, не зависящей от  $r$  в области фокального пятна радиуса  $R$ :

$$T(z, r, t = t_*) = T_0 + [T(z, t_*) - T_0] \eta(R - r). \quad (19)$$

Обычно радиус фокального пятна  $R$  больше длины волны воздействующего излучения, т.е. больше 1000 нм. Отметим, что за время  $t_*$  тепло распространяется примерно на расстояние  $v_F \sqrt{3t_*/v_{\text{ep}}} \approx 300$  нм, которое меньше типичных значений  $R$ .

Отвечающее условиям (18), (19) решение уравнения (17) имеет вид

$$\begin{aligned} T(r, z, t) = T_0 + \frac{C_{\text{lat}}}{L\lambda_0(t-t_*)} \sum_{n=0}^{\infty} \exp \left[ -\frac{\lambda_0}{C_{\text{lat}}}(t-t_*) \frac{\pi^2 n^2}{L^2} \right] \\ \times \cos \left( \frac{\pi n z}{L} \right) \int_0^L dz' [T(z', t_*) - T_0] \cos \left( \frac{\pi n z'}{L} \right) \\ \times \int_0^R dr' r' \exp \left[ -\frac{r^2 + r'^2}{4\lambda_0(t-t_*)} C_{\text{lat}} \right] I_0 \left[ \frac{rr' C_{\text{lat}}}{2\lambda_0(t-t_*)} \right]. \quad (20) \end{aligned}$$

Знак штрих у суммы означает, что слагаемое с  $n = 0$  берется с весом  $1/2$ , а  $I_0$  – модифицированная функция Бесселя первого рода. При  $r = 0$  в центре фокального пятна из (20) имеем более простое выражение

$$\begin{aligned} T(0, z, t) = T_0 + \frac{2}{L} \left\{ 1 - \exp \left[ -\frac{C_{\text{lat}} R^2}{4\lambda_0(t-t_*)} \right] \right\} \\ \times \sum_{n=0}^{\infty} \exp \left[ -\frac{\lambda_0}{C_{\text{lat}}}(t-t_*) \frac{\pi^2 n^2}{L^2} \right] \cos \left( \frac{\pi n z}{L} \right) \\ \times \int_0^L dz' [T(z', t_*) - T_0] \cos \left( \frac{\pi n z'}{L} \right). \quad (21) \end{aligned}$$

Из уравнения (17) и формулы (21) видно, что есть два характерных масштаба времени релаксации температуры. В плоскости пленки релаксация температуры определяется временем

$$\tau_R = \frac{C_{\text{lat}} R^2}{4\lambda_0}, \quad (22)$$

которое, например, для  $R \approx 3$  мкм составляет около десяти наносекунд. В свою очередь, время выравнивания температур по толщине пленки дается соотношением

$$\tau_L = \frac{C_{\text{lat}} L^2}{\pi^2 \lambda_0} \quad (23)$$

и при  $L \approx 100$  нм составляет около десяти пикосекунд (см. рис.1), то есть значительно меньше  $\tau_R$ .

Из (20), (21), видно, что температура  $T(r, z, t)$  имеет максимум при  $z = 0$  и  $r = 0$ , и именно она определяет наибольшую глубину абляции. В тонкой пленке за время  $t_*$  устанавливается практически однородное по толщине распределение температуры [28]. Поэтому на временах, больших  $t_*$ , в формуле (21) сумма по  $n$  определяется в основном слагаемым с  $n = 0$  и для  $T(0, 0, t)$  приближенно имеем

$$T(0, 0, t) \simeq T(0, t_*) \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\tau_R}{t - t_*}\right) \right]. \quad (24)$$

Поперечный теплоперенос приводит к уменьшению температуры в точке  $z = 0, r = 0$  и обеспечивает выход интеграла (16) на квазистационарное значение на временах в десятки наносекунд. Типичные зависимости глубины абляции тонкой пленки приведены на рис.5 для различных размеров фокального пятна. Видно, что квазистационарное значение  $d_t$  растет с увеличением  $R$  из-за роста времени, в течение которого в центре фокального пятна поддерживается достаточно высокая температура. Для тонких пленок имеет место уменьшение плотности потока энергии, при которой происходит эффективная абляция, по сравнению с соответствующими значениями для массивных образцов. Причиной этого уменьшения является то, что в случае тонких пленок поглощенная энергия импульса перераспределяется в меньшем объеме металла, который далее остывает в течение времени  $\tau_R$ , большего  $\tau_L$ . Поэтому характерные значения плотности потока энергии, необходимые для удаления нескольких атомных слоев алюминия, в случае тонких пленок (см. рис.5) оказываются заметно ниже, чем в случае массивных образцов (см. рис.2).

Учитывая, что характерные времена абляции много больше  $t_*$ , и используя соотношение (24), при  $T(0, t_*)$ , превышающих начальную температуру  $T_0$ , из (16) для квазистационарного значения глубины абляции находим

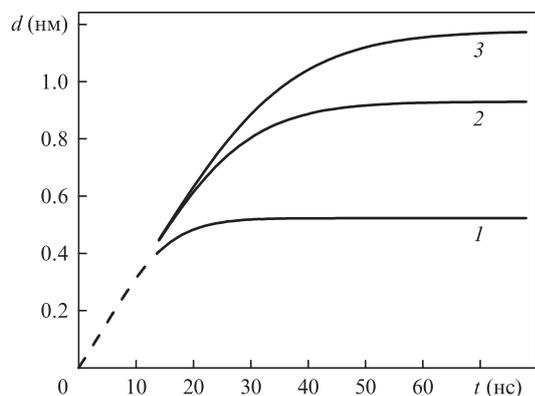


Рис.5. Зависимость глубины абляции пленки толщиной 100 нм от времени для радиусов фокального пятна  $R = 3$  (1), 4 (2), 4,5 мкм (3) при  $I_L = 2.8 \times 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>.

$$d_t \simeq v_* \tau_R \left\{ \ln \left[ \frac{U_0}{k_B T(0, t_*)} \right] \right\}^{-1} \exp \left[ -\frac{U_0}{k_B T(0, t_*)} \right], \quad (25)$$

где  $v_* \equiv v[T(0, t_*)]$ . При вычислении учтено, что существенный вклад в интеграл дают малые времена, на которых температура остается близкой к  $T(0, t_*)$ . Температуру  $T(0, t_*)$  можно оценить, считая, что для тонкой пленки за время  $t_*$  в области фокального пятна вся поглощенная энергия импульса равномерно распределилась по толщине пленки  $L$ , т.е.  $C_{\text{lat}} T(0, t_*) L = A I_L \tau$ , где  $A$  – средний за время действия импульса коэффициент поглощения. Принимая во внимание оценку для  $T(0, t_*)$ , для плотности потока энергии, при которой  $d_t = d_0 = 0.4$  нм, из (25) получаем

$$I_{\text{th}} = \frac{U_0 C_{\text{lat}} L}{k_B A \tau} \left( \ln \left\{ v_* \tau_R \left[ d_0 \ln \left( \frac{U_0}{k_B T(0, t_*)} \right) \right]^{-1} \right\} \right)^{-1}. \quad (26)$$

Согласно (26) величина  $I_{\text{th}}$  логарифмически слабо зависит от явного вида известного с небольшой точностью предэкспоненциального множителя в (25). Отметим, что следующая из (26) практически линейная зависимость порога абляции от толщины пленки отвечает обнаруженной экспериментально в [7, 9, 10].

В том случае, когда существенна передача тепла не только в поперечном направлении, но и в подложку, обладающую, как правило, много меньшей теплопроводностью, чем пленка, оценки по формуле (26) допустимы, если характерное время поперечного теплопереноса  $\tau_R$  заменить на время передачи тепла в подложку. Однако в силу логарифмической зависимости  $I_{\text{th}}$  от характерного времени это изменение не окажет существенного влияния на оценку величины  $I_{\text{th}}$  и ее зависимость от толщины пленки.

## 4. Заключение

Представлено сравнительно простое описание абляции нанопленок алюминия при их нагреве фемтосекундным импульсом лазерного излучения. Показано, что для достаточно толстых пленок абляция происходит за время около десяти пикосекунд, которое определяется остыванием поверхности в результате выноса энергии в глубь металла. Расчеты пороговых значений плотности потока энергии находятся в согласии с данными ряда экспериментов [24–26]. Для пленок, толщина которых менее 100 нм, и в отсутствие теплоотвода в подложку, необходимо учитывать поперечный перенос тепла, который при размере фокального пятна в несколько микрометров происходит за время около десяти наносекунд. Представленное рассмотрение абляции алюминия достаточно универсально и допускает обобщение применительно к абляции пленок других металлов.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 13-02-01377) и программ Президиума РАН и ОФН.

## Приложение

Приведем вывод выражения для скорости фронта испарения. Следуя [29], запишем равенство химических потенциалов в разных фазах, находящихся в равновесии:

$$\frac{\varepsilon_2}{k_B T} + \ln \frac{P}{k_B T} - c_v \ln k_B T - \frac{3}{2} \ln \frac{M}{2\pi \hbar^2} = \frac{\varepsilon_1}{k_B T} + c_1 \ln \frac{\hbar \omega}{k_B T}, \quad (\text{П.1})$$

где  $P$  – давление насыщенного пара;  $M$  – масса атома;  $c_1 = 3$  и  $c_V = 3/2$  – безразмерные теплоемкости конденсированной фазы и газа;  $\varepsilon_1$  и  $\varepsilon_2$  – равновесные энергии атома в конденсированной и газообразной фазах;  $\bar{\omega}$  – средняя частота колебаний решетки. Из (П.1) находим давление насыщенного пара

$$P = k_B T \left( \frac{\hbar \bar{\omega}}{k_B T} \right)^3 \left( \frac{M k_B T}{2\pi \hbar^2} \right)^{3/2} \exp \left[ \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{k_B T} \right]. \quad (\text{П.2})$$

Согласно [29] скорость испарения в пустоту определяется числом атомов, покидающих поверхность в единицу времени с единицы площади поверхности тела. Пренебрегая влиянием неизвестного коэффициента отражения частиц газа от поверхности, можно оценить скорость фронта испарения как

$$v \simeq \frac{P}{N \sqrt{2\pi M k_B T}} = \frac{\bar{\omega}^3 M}{4\pi^2 N k_B T} \exp \left[ -\frac{U_0}{k_B T} \right] \equiv v(T) \exp(-U_0/k_B T), \quad (\text{П.3})$$

где  $U_0 = \varepsilon_2 - \varepsilon_1$ , а  $N$  – число атомов в единице объема.

Приведем оценку для алюминия. Полагая  $M = 4.5 \times 10^{-23}$  г,  $N = 4.9 \times 10^{22}$  см<sup>-3</sup>,  $\bar{\omega} \simeq 2.5 \times 10^{13}$  с<sup>-1</sup> и  $T \approx T_{\text{lat}}^{\text{max}} \simeq 5500$  К, имеем  $v(T) \simeq 4.8 \times 10^5$  см/с, что близко к значению  $4 \times 10^5$  см/с, приведенному в [6] для алюминия.

1. Preuss S., Demchuk A., Stuke M. *Appl. Phys. A*, **61**, 33 (1995).
2. Chichkov B.N., Momma C., Nolte S., Von Alvensleben F., Tünnermann A. *Appl. Phys. A*, **63**, 109 (1996).
3. Nolte S., Momma C., Jacobs H., Tünnermann A., Chichkov B.N., Wellegehausen B., Welling H. *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**, 2716 (1997).
4. Afanasiev Y.V., Chichkov B.N., Isakov V.A., Kanavin A.P., Uryupin S.A. *J. Russ. Laser Res.*, **20**, 189 (1999).
5. Gamaly E.G., Rode A.V., Luther-Davies B., Tikhonchuk V.T. *Phys. Plasmas*, **9**, 949 (2002).
6. Анисимов С.И., Лукьянчук Б.С. *УФН*, **172**, 301 (2002).
7. Matthias E., Reichling M., Siegel J., Käding O.W., Petzoldt S., Skurk H., Bizenberger P., Neske E. *Appl. Phys. A*, **58**, 129 (1994).
8. Güdde J., Hohlfeld J., Müller J.G., Matthias E. *Appl. Surf. Sci.*, **127**, 40 (1998).
9. Stuart B.C., Feit M.D., Herman S., Rubenchik A.M., Shore B.W., Perry M.D. *J. Opt. Soc. Am. B*, **13**, 459 (1996).
10. Bozsóki I., Balogh B., Gordon P. *Opt. Laser Technol.*, **43**, 1212 (2011).
11. Бежанов С.Г., Канавин А.П., Урюпин С.А. *Квантовая электроника*, **44** (9), 859 (2014).
12. Balasubramni T., Kim S.H., Jeong S.H. *Appl. Surf. Sci.*, **255**, 9601 (2009).
13. Smith D.Y., Segall B. *Phys. Rev. B*, **34**, 5191 (1986).
14. Rakić A.D. *Appl. Opt.*, **34**, 4755 (1995).
15. Sin'ko G.V., Smirnov N.A., Ovechkin A.A., Levashov P.R., Khishchenko K.V. *High Energy Density Phys.*, **9**, 309 (2013).
16. Lin Zh., Zhigilei L.V., Celli V. *Phys. Rev. B*, **77**, 075113 (2008).
17. Иногамов Н.А., Петров Ю.В. *ЖЭТФ*, **137**, 505 (2010).
18. Петров Ю.В., Иногамов Н.А., Мигдал К.П. *Письма в ЖЭТФ*, **97**, 24 (2013).
19. Бежанов С.Г., Канавин А.П., Урюпин С.А. *Оптика и спектроскопия*, **114**, 422 (2013).
20. Исаков В.А., Канавин А.П., Урюпин С.А. *Квантовая электроника*, **36** (10), 928 (2006).
21. Григорьев И.С., Мейлихов Е.З. (ред.) *Физические величины. Справочник* (М.: Энергоатомиздат, 1991).
22. Wu C., Zhigilei L.V. *Appl. Phys. A*, **114**, 11 (2014).
23. Siwick B.J., Dwyer J.R., Jordan R.E., Miller R.D. *Science*, **302**, 1382 (2003).
24. Perrie W., Gill M., Robinson G., Fox P., O'Neill W. *Appl. Surf. Sci.*, **230**, 50 (2004).
25. Kruger J., Meja P., Autric M., Kautek W. *Appl. Surf. Sci.*, **186**, 374 (2002).
26. Sokolowski-Tinten K., Bialkowski J., Cavalleri A., Von der Linde D., Oparin A., Meyer-ter-Vehn J., Anisimov S.I. *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 224 (1998).
27. Dabby F.W., Paek U.-C. *IEEE J. Quantum Electron.*, **8**, 106 (1972).
28. Bezhanov S.G., Kanavin A.P., Uryupin S.A. *Phys. Lett. A*, **378**, 975 (2014).
29. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. *Курс теоретической физики* (М.: Физматлит, 2001, т.5).