

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

На правах рукописи

Данилов Павел Александрович

**ПРЕЦИЗИОННОЕ ЛАЗЕРНОЕ МИКРО- И НАНОСТРУКТУРИРОВАНИЕ
СЕРЕБРЯНЫХ ПЛЕНОК**

Специальность 01.04.21 – лазерная физика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва– 2021

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

Научный руководитель: доктор физико-математических наук, профессор

Ионин Андрей Алексеевич

Научный консультант: доктор физико-математических наук, доцент

Кудряшов Сергей Иванович

Официальные оппоненты:

Головань Леонид Анатольевич, доктор физико-математических наук, доцент, Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, профессор кафедры общей физики и молекулярной электроники

Ашитков Сергей Игоревич, кандидат физико-математических наук, Объединенный институт высоких температур РАН, старший научный сотрудник лаборатории лазерного воздействия Отдела физики экстремальных состояний

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт теоретической физики им. Л.Д. Ландау Российской академии наук (ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН)

Защита диссертации состоится «21» июня 2021 года в 11:00 часов на заседании диссертационного совета Д 002.023.03 при Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физическом институте им. П.Н. Лебедева Российской академии наук по адресу: 119991, г. Москва, Ленинский проспект, д.53.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ФИАН и на сайте института www.lebedev.ru

Автореферат разослан « » 2021 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета Д 002.023.03

доктор физико-математических наук

А.С. Золотко

1. ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы

Пристальное внимание исследователей в области нанофотоники, фотовольтаики, фотокатализа, а также в ультрачувствительном химическом и биологическом анализе в течение последних десятилетий приковано к различного рода функциональным нано-, микроэлементам и их регулярным массивам [1]. Ввиду сложной морфологии для изготовления передовых нано- и микроструктур применяют универсальные, современные, но сложные, дорогостоящие и трудоемкие процедуры: электронную, ионную и фотолитографию [2]. В результате большинство прототипов функциональных микро- и наноструктур создается только для демонстрации принципа действия (*modus operandi*), требуя недорогих, высокопроизводительных и гибких технологий для последующего массового производства.

Быстроразвивающиеся технологии лазерного структурирования в перспективе способны конкурировать с хорошо развитыми литографическими нано- и микропроцессами с точки зрения финансовых и энергетических затрат на изготовление структур и эксплуатацию установок, производительности, отсутствия токсичных веществ в техпроцессе (экологичность), гибкости применения и внедрения в экспериментальные схемы [3]. При помощи методов прямой нано-, пико- и фемтосекундной лазерной записи при различных геометриях фокусировки [4-7] на поверхности тонких металлических пленок создается большое количество разнообразных структур нано-, субмикро- и микро размеров: наноотверстия [8], наноострия [9, 10], микроконусы [11] и микроотверстия [12]. Такого рода структуры обладают уникальными оптическими, нелинейными и спектральными свойствами, что находит применение в биосенсорике, нанофотонике [13, 14], а также для плазмоники среднего и дальнего ИК-диапазонов, например, для поверхностно-усиленного поглощения или отражения излучения [15].

Лазерное структурирование металлических и полупроводниковых пленок при высоких числовых апертурах ($NA > 0.1$) фокусирующей оптики опирается в

основном на физические процессы, которые либо сохраняют (трансляционные), либо нарушают (аблятивные) целостность пленки.

Как правило, сами по себе металлические пленки используются из-за легкого, быстрого и недорогого способа получения (например, магнетронного напыления) по сравнению с плазменным или эпитаксиальным осаждением полупроводниковых пленок. При этом морфология структур при воздействии сфокусированных ультракоротких лазерных импульсов (УКИ) на поверхность пленок определяется микро- и наномасштабными процессами энерго- и массопереноса после вложения энергии. Абляционные механизмы приводят к однократному появлению нано- и микроотверстий, обычно украшенных гладкими нанободками или самоорганизующимися нанокоронами после кристаллизации [16].

Процессы, протекающие при формировании лазерно-индуцированных nanoострий обусловлены несколькими факторами. В первую очередь влияние на конечную морфологию оказывает: 1) вложение энергии, определяющее механизмы абляционного удаления; 2) транспорт энергии, определяющий потери; 3) непосредственно удаление материала согласно одному из известных механизмов в результате определенного сочетания гидродинамических и кавитационных эффектов; 4) гидродинамическая неустойчивость формируемой нано- или микроструктуры [17, 18]. Вместе с тем до сих пор не проведены систематические исследования влияния толщины металлической пленки, а также фокусировки УКИ (ширины ванны расплава) на геометрические параметры возникающих nanoструктур. Также известны данные молекулярно-динамического моделирования, указывающие на нанокристаллическую структуру микроконусов в случае золота [19], однако экспериментальные исследования в этой области отсутствуют. При этом суть проблемы заключается в том, что несмотря на разнообразие теоретического и экспериментального материала [4-19], отсутствует целостная картина физических механизмов формирования микро- и nanoструктур в тонких металлических пленках под действием УКИ.

Цель работы состоит в количественном исследовании основных стадий формирования нанопичков и микроотверстий при взаимодействии ультракоротких лазерных импульсов (УКИ) с тонкими металлическими пленками, начиная с процессов вложения энергии УКИ и последующей электронной динамики, включая транспорт энергии в ионную подсистему (решетку).

Соответственно, были поставлены и решены следующие конкретные задачи:

1. Изучить условия вложения энергии путем исследования пропускания и поглощения УКИ в тонких металлических пленках.
2. Исследовать области вложения энергии УКИ при острой фокусировке излучения, оценить процессы теплопереноса в металлических (серебряных) пленках
3. Количественно исследовать перераспределение материала расплава тонкой пленки после воздействия одиночных остросфокусированных УКИ варьируемой энергии. Сделать выводы о характере движения потоков расплава, сравнить предложенный метод с известными способами анализа микро- и наноструктур.
4. Исследовать применения мультиплексирования лазерного пучка для реализации высокой (более 10^6 элементов/с) производительности фабрикации функциональных элементов.

Научная новизна работы

1. Обнаружено увеличение пропускание ультракоротких лазерных импульсов ближнего ИК-диапазона (1030 нм) с длительностью 200 фс в диапазоне интенсивностей от $\sim 0.1 - 5$ ТВт/см² при воздействии на серебряную пленку толщиной ~ 100 нм. Рост коэффициента пропускания связан с нагревом электронной подсистемы и значительным увеличением частоты электрон-электронных соударений. Экспериментальные результаты и их анализ в рамках двухтемпературной модели позволили определить константу электрон-

электронного рассеяния серебра (материала с сильным межзонным поглощением) $K_{ee} = (5,5 \pm 0,5) \text{ эВ}^{-2} \text{ фс}^{-1}$ в случае двухтемпературной (2Т) стадии эволюции электронной подсистемы ($T_e \gg T_l$);

2. В абляционном режиме для серебряных пленок определен характерный размер области вложения энергии лазерных фемтосекундных (~ 300 фс) импульсов видимого (515 нм) диапазона в случае двухтемпературного (2Т) состояния электрон-ионной подсистемы при пиковых интенсивностях лазерных импульсов $\sim 10 \text{ ТВт/см}^2$;

3. Для количественного анализа перераспределения вещества в процессе одноимпульсной фемтосекундной (~ 300 фс) лазерной абляции серебряной пленки толщиной ~ 100 нм предложен и использован метод пространственного радиально-симметричного профилирования на основе энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (ЭДРС). Полученные нанопочки и микроотверстия проанализированы с точки зрения количественного соотношения долей перемещенного и удаленного материала расплава

Практическая значимость работы

На основе проведенных исследований непосредственно в данной работе установлены нелокальные абляционные эффекты при формировании микро- и наноотверстий в серебряной пленке, связанные с латеральной теплопроводностью, ударно-волновым воздействием плазмы, подповерхностным кипением и фазовым взрывом в расплавленном материале пленке при воздействии сильно фокусированных фемтосекундных лазерных импульсов. Предложенный в работе метод энергодисперсионного рентгеновского микроанализа применим для определения распределения массы вещества пленки по радиальным сечениям и анализа баланса вещества в пределах фокального пятна. Полученные в ходе экспериментальных исследований структуры используются в качестве ключевых элементов больших периодических структур (массивов), применимых в сенсорике, резонансной спектроскопии

поверхностных плазмонов, поляризационно-селективном возбуждении люминесценции на структурированных поверхностях.

Методология и методы исследования

Экспериментальные результаты работы получены с помощью передовых лазерных систем фемто-, пико- длительности путем и схем лазерной обработки. Аналитические исследования проведены с использованием высокоточных разноплановых, методов структурного и химического анализа.

Положения, выносимые на защиту

1. Под действием ультракоротких лазерных импульсов (УКИ) ближнего ИК-диапазона с длительностью ~ 200 фс и с интенсивностями $\sim 0.1 - 4.2$ ТВт/см² на серебряные пленки (толщина ~ 100 нм) происходит нагрев электронной подсистемы металла и значительное увеличение частоты электрон-электронных соударений, что вызывает рост коэффициента пропускания УКИ на порядок.

2. При одноимпульсной абляции серебряных пленок толщиной $\sim 30 - 380$ нм ультракороткими лазерными импульсами видимого и ближнего ИК-диапазона длительностью ~ 300 фс, размер латеральной области теплового воздействия на $\sim 0,5 - 1$ мкм превышает характерный гауссовский радиус фокусировки вследствие быстрой термодиффузии горячих электронов.

3. Предложено и апробировано применение метода энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (ЭДРС) для профилометрического измерения радиального-симметричного распределения массы серебряных пленок толщиной ~ 100 нм при одноимпульсной центросимметричной абляции ультракороткими лазерными импульсами видимого диапазона. Впервые количественно охарактеризовано соотношение удаленной и перемещенной долей расплава материала мишени.

Степень достоверности

Достоверность полученных в диссертации результатов подтверждается использованием сертифицированного оборудования, хорошей воспроизводимостью, согласием с результатами теоретического моделирования, докладами на международных конференциях и публикациями в ведущих мировых научных журналах.

Апробация работы

Основные результаты диссертации докладывались автором на международных конференциях: International Symposium “Fundamentals of Laser Assisted Micro – and Nanotechnologies” (FLAMN-16), Saint - Petersburg, Russia, 2016; International Conference on Metamaterials and Nanophotonics (METANANO-2017), Vladivostok, Russia, 2017; 11th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications – ICPEPA 11, Vilnius (Lithuania); International conference on Ultrafast Optical Science (UltrafastLight-2018), Moscow, Russia, 2018.

Основные результаты, полученные в диссертации, опубликованы в 7 статьях, индексируемых в базах данных Web of Science и Scopus и в 4 материалах научных конференций.

Личный вклад автора

Автор лично участвовал в постановке задач исследований, планировал и разрабатывал экспериментальные схемы и протоколы измерений, участвовал в подготовке и выполнении экспериментов, обработке экспериментальных данных, выполнял интерпретацию результатов и проводил их обсуждение с квалифицированными сотрудниками.

Структура и объем диссертационной работы

Диссертационная работа состоит из введения, четырех глав и заключения. Работа содержит 107 страниц печатного текста, 34 рисунка и 2 таблицы. Библиография включает 129 наименований.

2. ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ

Во введении проведено обоснование актуальности выбранной темы, определены цели и задачи диссертационной работы, показана научная новизна и практическая значимость работы, сформулированы выносимые на защиту положения.

В первой главе проведен обзор предшествующих экспериментальных и теоретических работ по теме физических процессов лазерной абляции (ЛА) металлов и металлических пленок с акцентом на механизмы вложения энергии УКИ, развития электронной динамики и переноса энергии из электронной подсистемы в решетку с последующим абляционным удалением материала. Рассмотрено описание электрон-электронного рассеяния, электрон-фононного взаимодействия, диффузии тепла в рамках двухтемпературной модели (ДТМ) для металлов. Для всех ключевых процессов установлена корреляция с количеством вложенной энергией, последующим нагревом электронного газа и инъекцией дополнительных свободных носителей. Также обсуждается несколько возможных механизмов формирования микро- и наноструктур на поверхности металлических пленок и рассмотрены применения функциональных структур на их основе. Приведенные работы свидетельствуют о наличии качественно установленных или теоретически предсказанных физических эффектов, которые недостаточно исследованы экспериментально.

Во второй главе приведено используемое в работе экспериментальное оборудование и методы исследования. Выполнено описание стендов для микро-, наноструктурирования (Рис. 1) и измерения оптических характеристик (отражение/пропускание) металлических пленок с лазерными источниками УКИ.

Методы исследования образцов включали в себя сканирующую электронную микроскопию (СЭМ), энергодисперсионную рентгеновскую спектроскопию (ЭДРС), сканирующую зондовую микроскопию (СЗМ) и магнетронное напыление (как метод получения серебряных пленок).

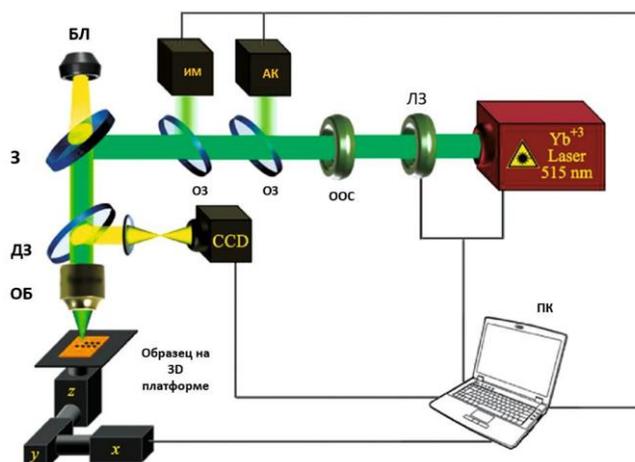


Рис. 1. Стенд для микро- и наноструктурирования: (АК) автокоррелятор, (ИМ) пироэлектрический измеритель мощности, (ООС) отражающий ослабитель, (БЛ) лампа подсветки, (CCD) камера для визуализации структур и фокусировки на поверхность образца, (ОЗ) откидные зеркала, (ПК) компьютер для управления параметрами лазера и перемещениями трансляционной платформы.

В третьей главе сначала рассматриваются механизмы вложения и транспорта энергии лазерных УКИ видимого и ИК-диапазонов для тонких серебряных пленок с целью изучения электронной динамики металлов в 2Т стадии [20]. Так, при облучении фемтосекундными (~ 200 фс) УКИ на длине волны 1030 нм серебряных пленок толщиной от 40 до 125 нм с варьируемой интенсивностью до 5 ТВт/см^2 обнаружено увеличение коэффициента пропускания УКИ для всех толщин пленок по мере роста энергии лазерного импульса (Рис. 2). В результате моделирования экспериментальных данных в рамках ДТМ, проведенного сотрудниками ФИАН Бежановым С.Г. и Урюпиным С.А., было установлено значение константы электрон-электронного рассеяния для серебра $K_{ee} \approx 6 \text{ фс}^{-1} * \text{эВ}^{-2}$, что значительно превышает известные из литературы значения $K_{ee} \sim 0.04 - 0.3 \text{ фс}^{-1} * \text{эВ}^{-2}$ [21].

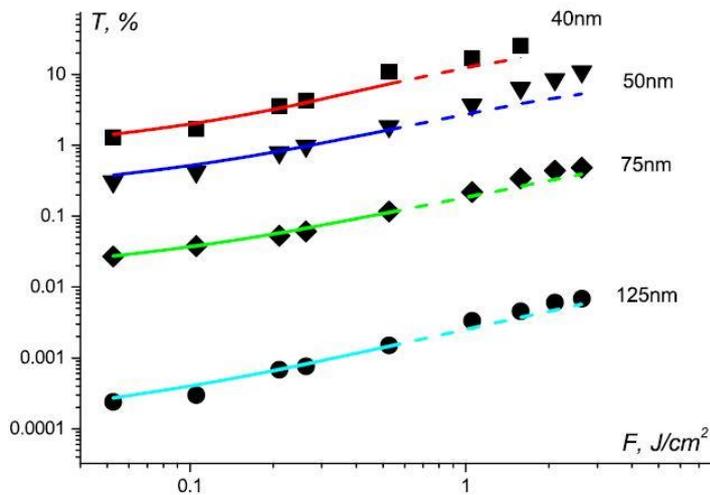


Рис.2. Экспериментальные данные (точки) и результаты моделирования (сплошные кривые) значений коэффициента пропускания УКИ на длине волны 1030 нм длительностью ~ 200 фс для серебряных пленок: (40 ± 2) нм - квадраты (эксперимент) и красные линии (теория); (50 ± 2) нм - треугольники и синие линии; (75 ± 5) нм - ромбы и зеленые линии; (125 ± 5) нм - круги и голубые линии. Экспериментальная ошибка меньше размера маркера.

Одним из возможных объяснений данного эффекта является увеличение вклада переходных процессов в частоту соударений. Во время поглощения импульса электронная температура достигает значений $\sim 2-3$ эВ, поэтому можно ожидать снижение коэффициента поглощения (экстинкции) и увеличение коэффициента пропускания пленки.

Следовательно, была рассмотрена экспериментальная зависимость коэффициента экстинкции (поглощения) для использованных в нашей работе серебряных пленок в зависимости от интенсивности (до $5 \text{ ТВт}/\text{см}^2$) падающих фемтосекундных (~ 200 фс) лазерных импульсов (Рис. 3) ближнего ИК-диапазона (1030 нм). Пунктирной линией на графике изображено табличное поглощение [22]. Мы видим, что для всех пленок по мере роста интенсивности коэффициент экстинкции уменьшается и становится значительно ниже табличного.

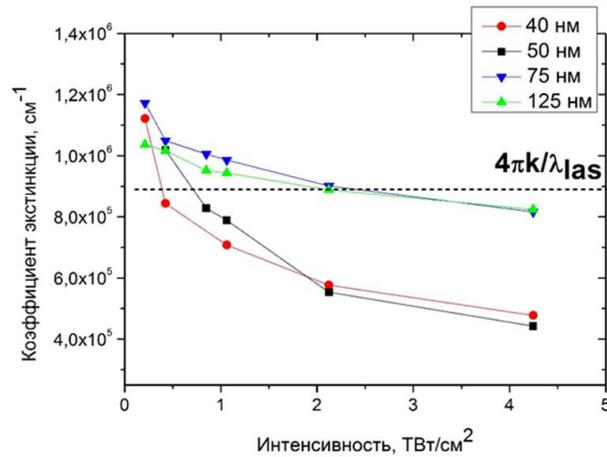


Рис. 3. Коэффициент экстинкции для серебряных пленок (40 ± 2) нм, (50 ± 2) нм, (75 ± 5) нм, (125 ± 5) нм в зависимости от интенсивности падающих лазерных импульсов с длиной волны 1030 нм и длительностью 200 фс. Пунктирной линией на графике отмечено табличное значение коэффициента экстинкции [22].

Для сравнения были проведены аналогичные исследования пропускания УКИ видимого диапазона (515 нм, 300 фс) через серебряную пленку толщиной 30 нм. В таких условиях наблюдается необычный рост коэффициента поглощения по мере увеличения пиковой интенсивности УКИ. Данный экспериментальный факт был проанализирован с учетом нагрева электронного газа и межзонными переходами дополнительных неравновесных свободных носителей.

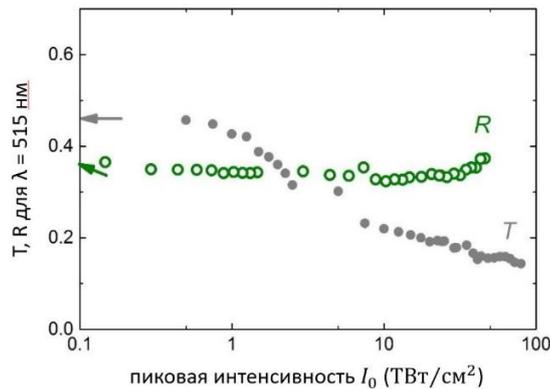


Рис. 4. Зависимость коэффициента отражения R (зеленые окружности) и коэффициента пропускания T (серые окружности) серебряной пленки толщиной 30 нм от пиковой интенсивности I_0 . Стрелками отмечены начальные значения соответствующих коэффициентов T и R для невозбужденной пленки.

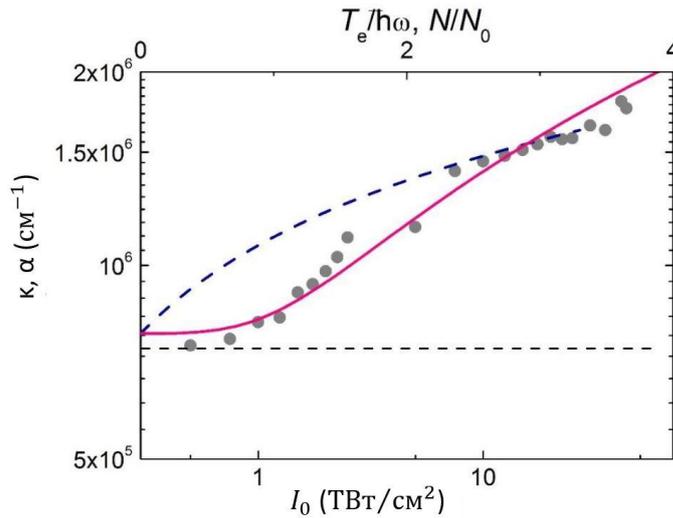


Рис. 5. – Экспериментальная зависимость (с учетом поправки на отражение) коэффициента экстинкции κ_0 серебряной пленки толщиной 30 нм от пиковой интенсивности I_0 (нижняя ось, серые окружности) и расчетные зависимости коэффициента поглощения α серебра на длине волны 515 нм от безразмерных параметров N/N_0 (синяя пунктирная кривая) и $T_e/\hbar\omega$ (розовая кривая) на верхней оси. Диапазоны изменения $N = (0 - 2) \times 10^{23} \text{ см}^{-3}$ и $T_e = 0 - 10 \text{ эВ}$. Горизонтальная пунктирная линия означает начальное значение коэффициента поглощения невозбужденного серебра для длины волны 515 нм [22].

Коэффициент пропускания T демонстрирует монотонный спад от начального значения 0.45 до асимптотической величины 0.15 ± 0.01 , в то время как коэффициент отражения R претерпевает незначительные изменения в диапазоне 0.32-0.38 по мере роста пиковой интенсивности I_0 (Рис. 4). При этом коэффициент поглощения определяется выражением:

$$\kappa(I_0) \approx \frac{1}{d} \ln \left(\frac{T_0}{(1 - R(I_0))T(I_0)} \right) \quad (1)$$

Возможные причины роста коэффициента поглощения серебра рассматривались через два предельных модельных случая: 1) фотоинъекции дополнительных свободных носителей N (полная концентрация $N + N_0$) при слабом нагреве электронного газа («холодный» электронный газ); 2) сильный нагрев электронного газа до температуры T_e с сохранением постоянной концентрации свободных носителей N_0 (Рис. 5). Реальная ситуация является

качественно промежуточной ввиду возникновения дырок в d -зоне в результате межзонных переходов фотоинжектированных d -электронов в лазерном поле, что сопровождается процессами рекомбинации по Оже-механизму с одновременной генерацией надтепловых свободных электронов. В совокупности с внутризонными переходами свободных s -электронов, это еще сильнее усложняет динамику релаксационных процессов.

Далее в **третьей главе** на примере фемтосекундной ЛА тонких пленок (300 фс, 515 нм) были обнаружены и изучены нелокальные абляционные эффекты, связанные с латеральной теплопроводностью и нагревом пленки тормозным излучением плазмы. Были проведены эксперименты по определению пороговых значений ЛА для серебряной пленки толщиной $d \approx (50 \pm 5)$ и различных условиях фокусировки микрообъективами с числовыми апертурами $NA = 0.1, 0.25$ и 0.65 . Анализ выполнен при помощи СЭМ для нахождения характерных областей вложения энергии УКИ по зависимости $R^2 - \ln E$ для кратеров, полученных непосредственно в пленке и стеклянной подложке.

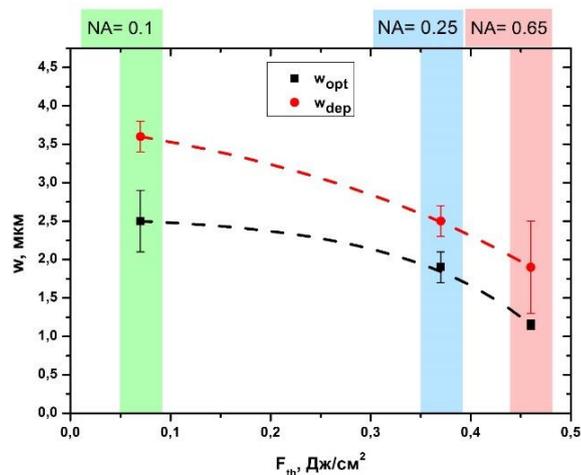


Рис. 6. Зависимости характерной области фокусировки для кратера в стекле (w_{opt}) и микроотверстий (w_{dep}) в серебряной пленке толщиной ~ 50 нм от порога абляции серебра для различных фокусирующих числовых апертур NA.

При этом установлено (Рис. 6), что характерный размер области фокусировки в пленке, определяемый аппроксимацией размеров микроотверстий для всех режимов фокусировки на $0.5 - 1$ мкм превышает таковой для кратера в

стеклянной подложке. Это свидетельствует о том, что при взаимодействии лазерного импульса с серебряной пленкой после непосредственного вложения энергии и разогрева электронной подсистемы металла происходит латеральный теплоперенос (даже при низких околопороговых значениях плотности энергии), определяющий конечный размер сформированного микроотверстия.

Для понимания явлений плавления, гидродинамического переноса и кристаллизации расплава металла при лазерном нано- и (суб)микроструктурировании тонких пленок, а также их полноценного (количественного) теоретического моделирования необходимы измерения трехмерных распределений массы вещества в нано- и (суб)микроструктурах, которые до сих пор не выполнены по техническим причинам. В качестве косвенных визуальных индикаторов направлений и интенсивности потоков расплава выступают кристаллизованные нано- и (суб)микроструктуры, исследуемые с помощью сканирующей (СЭМ) или просвечивающей (ПЭМ) электронной микроскопии. Разрез отвержденных радиально-симметричных структур фокусированным ионным пучком (ФИП) после напыления защитного слоя позволяет, даже при практически непроверяемом условии их соответствующей минимальной пост-модификации, получить лишь качественную или полуколичественную информацию о трехмерном распределении массы вещества по его двухмерному радиальному сечению. В связи с этим нами был предложен количественный метод анализа пространственного перераспределения материала при фемтосекундной ЛА серебряной пленки толщиной 100 нм на основе энергодисперсионной рентгеновской микро-спектроскопии. Данный метод в режиме сканирования позволил впервые исследовать пространственные профили ЭДРС-сигналов по элементам Ag (пленка) и Si (подложка) в области одноимпульсной лазерной модификации с высоким пространственным разрешением ≈ 10 нм/точку и накоплением до 50 отсчетов/точку для определения радиального распределения массовой толщины M микроструктуры по сравнению с немодифицированной пленкой.

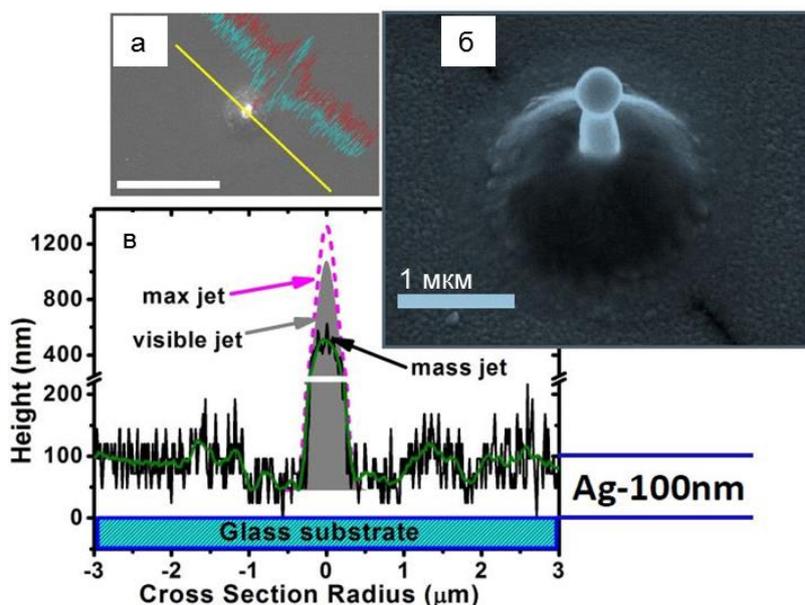


Рис.7. (а) СЭМ-изображение структуры (вид сверху, размерная метка ≈ 5 мкм) на поверхности серебряной пленки, облученной единичным фемтосекундным импульсом с $F \approx 0.37$ Дж/см², с ненормированными радиальными ЭДРС-профилями элементов (Ag – голубая кривая, Si – красная кривая) вдоль желтой линии сканирования. (б) СЭМ-изображение той же структуры под углом обзора $\approx 30^\circ$ после ЭДРС-анализа (размерная метка ≈ 1 мкм), где темная косая линия – ожог поверхности по линии сечения в ходе ЭДРС-анализа. (в) Нормированный радиальный профиль толщины слоя серебра по сечению этой структуры до (mass jet, черная кривая) и после коррекции (normalized mass jet, красная кривая). Пунктирная кривая (max jet) показывает максимально возможную высоту струи при ее видимой остаточной толщине у основания и отсутствии вылета капель, а профиль, заштрихованный серым цветом – видимый размер струи по СЭМ-изображению (visible jet).

Одноимпульсное лазерное воздействие на поверхность пленки при небольшой пиковой плотности энергии в центре фокального пятна $F \approx 0.37$ Дж/см² приводит к появлению небольшого микроконуса с маленьким зародышем nano-острия на вершине (Рис. 7 а,б), тогда как по периферии области воздействия – при меньшей плотности энергии – происходит отжиг или даже перекристаллизация нанозернистой структуры пленки. ЭДРС-анализ вдоль

радиального сечения данной структуры показывает радиально-симметричное распределение элементов, при этом в области микроконуса сигнал рентгеновской флуоресценции, отвечающий содержанию серебра на глубине проникновения электронного пучка, падает, а соответствующий сигнал кремния от подложки резко возрастает (Рис. 7, а). Итоговый профиль показывает, что в области острия (струи) массовая толщина M пленки возрастает более чем в пять раз, а по его периферии – уменьшается в три раза со слабовыраженным бортиком на периферии конуса. Следовательно, лазерное воздействие приводит к сильному перераспределению массы.

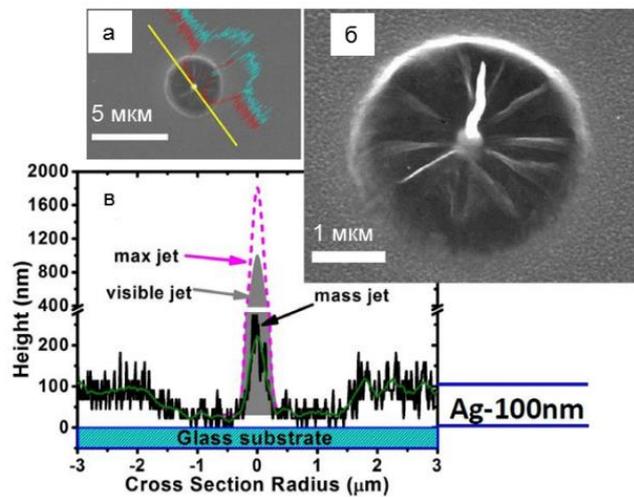


Рис. 8. (а) СЭМ-изображение структуры (вид сверху, размерная метка ≈ 5 мкм) на поверхности серебряной пленки, облученной единичным импульсом с $F \approx 0.53$ Дж/см², с ненормированными радиальными ЭДРС-профилями элементов Ag и Si. (б) СЭМ-изображение той же структуры под углом обзора $\approx 30^\circ$ до ЭДРС-анализа (размерная метка ≈ 1 мкм). (в) Нормированный радиальный профиль толщины слоя серебра по сечению этой структуры до и после коррекции, профиль максимально возможной высоты струи и профиль видимого размера струи. См. обозначения на Рис. 7.

При увеличении пиковой плотности энергии до $F \approx 0.53$ Дж/см² центральное острие (струя) на вершине конуса получается более высоким (Рис. 8), при этом купол микроконуса становится более тонким (темным) и гофрированным. Эти

визуальные детали СЭМ-изображений отчетливо проявляются в профилях массовой толщины (Рис. 8, а, в). Имеет место почти двукратное утончение струи у основания при сохранении высоты струи почти в две начальные толщины пленки. В то время как толщина купола уменьшается почти в десять раз по сравнению с начальной. Большая разница между «max jet» и «visible jet» на Рис. 8 указывает на существенный вынос массы через восходящую струю в виде отдельных вылетающих капель.

В четвертой главе рассмотрены применения микро- и наноструктур, сформированных на поверхности металлических пленок методами ЛА, в том числе с изменяемым распределением интенсивности лазерного пучка на входе фокусирующей системы за счет использования дифракционных оптических элементов (ДОЭ).

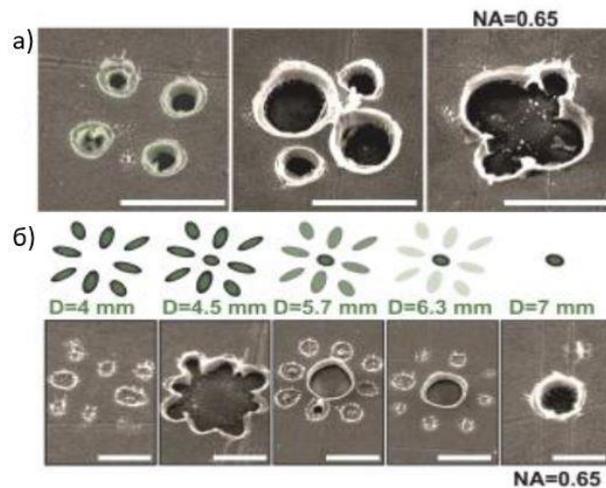


Рис. 9. а) СЭМ изображения (вид сбоку) под углом наклона 30° серии рисунков, полученных при помощи 4-секторного мультиплекса импульсами фемтосекундной длительности при $NA = 0,65$ и возрастающими энергиями 0.4, 0.68 и 1.2 мкДж. Небольшая астигматическая асимметрия рисунков обусловлена небольшой дефокусировкой. б) Аналогичные СЭМ-изображения для 8-секторного ДОЭ с переменным диаметром D пучка фемтосекундного лазера при $NA = 0.65$ и $E = 0.65, 1.4, 1.4, 1.4, 1.9$ мкДж. Распределение интенсивности в каждом случае схематично показано выше каждого СЭМ-изображения. Масштабные метки для а) и б) 2 мкм.

Так, для ДОЭ в виде 4-, 8- и 20-секторных зеркал преимуществом является увеличенная фокальная глубина по сравнению с обычным гауссовским пучком, которая достигается за счет формирования областей перекрытия тепловых волн от локальных источников нагрева на поверхности мишени, связанных с каждым мультиплексированным оптическим пятном (Рис.9). При энергиях лазерных импульсов $E > 0,4$ мкДж для 4-секторного ДОЭ пятна латеральной абляции стремятся слиться из-за их более сильного перекрытия и сближения соответствующих тепловых волн, что в конечном итоге приводит к поперечному центральному абляционному сквозному отверстию (Рис. 9 (а)).

Также в четвертой главе рассмотрено использование острогофокусированных, пространственно-мультиплексированных фемтосекундных (~ 300 фс) лазерных импульсов (длина волны 1030 нм) для создания на поверхности серебряной (толщина $d=50 \pm 5$ нм) пленки на стеклянной подложке микроэлементов (микроотверстий) со сверхбыстрой скоростью, приближающейся к 25 млн элементов/с.

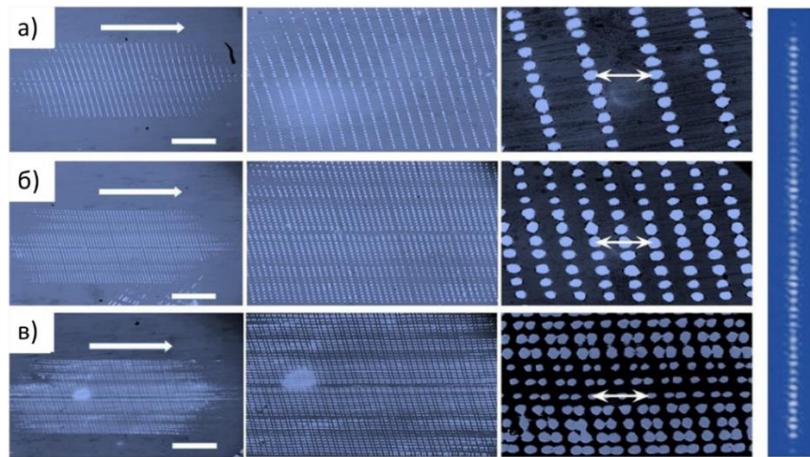


Рис.10. Оптические изображения (вид сверху) массивов сквозных микроотверстий в серебряной пленке толщиной $d = 50$ нм при фокусировке асферической линзой $NA = 0.5$ с энергией лазерных импульсов $E_p = 5$ мкДж, скорости сканирования $V = 7$ м/с (направление сканирования указано одиночной стрелкой) и различных частотах повторений $f = 100$ кГц (а), 200 кГц (б) и 500 кГц (в). Масштаб изображений увеличивается слева направо с масштабной меткой 500 мкм (слева) и 70 мкм (двусторонняя стрелка). Справа на вставке распределение интенсивности в фокальной плоскости асферической линзы с ДОЭ $N=51$ элемент.

Для этого исходный пучок мультиплексировался дифракционно-оптическими элементами (ДОЭ) из плавленного кварца в линейный массив из 51 круглых пятен с энергией в каждом не менее 100 нДж. Сканирование лазерного пучка с энергией в импульсе ≤ 5 мкДж, частотой следования импульсов до 2 МГц проводилось с использованием гальваносканера АТЕКО с максимальной скоростью до 7 м/с. Для фокусировки применялся стандартный F-Theta объектив с фокусным расстоянием $f = 100$ мм и широким рабочим полем 100×100 мм², а для меньших размеров микроотверстий – асферическая линза Thorlabs C240TME-V с числовой апертурой $NA = 0.5$. Размеры полученных микроотверстий $D = 2 - 6$ мкм с периодами от 6 до 12 мкм при скорости записи $25 \cdot 10^6$ элементов/с (Рис. 10).

Основные результаты проделанной работы изложены в Заключение.

3. ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

Данная работа посвящена исследованию основных процессов вложения и транспорта энергии фемтосекундных лазерных импульсов для тонких серебряных пленок и последующего абляционного перераспределения расплавленного материала, определяющих конечную морфологию микро- и наноструктур на их поверхности. Такие исследования важны как с фундаментальной (например, уточнение параметров оптического поглощения и объемной плотности вложенной энергии, констант электрон-электронного рассеяния в двухтемпературной стадии возбуждения электронной подсистемы материалов с сильным межзонным поглощением – серебра), так и с практической точки зрения – для высокопроизводительной лазерной записи больших упорядоченных массивов нано- и микроэлементов (метаповерхностей). В рамках подготовки диссертации получены следующие основные результаты:

1) Воздействие фемтосекундных (длительностью ~ 200 фс) лазерных импульсов на длине волны 1030 нм с интенсивностями в диапазоне $\sim 0.1 - 4.2$ ТВт/см² на поверхность серебряных пленок толщиной 40 – 125 нм приводит к монотонному увеличению коэффициента пропускания на порядок величины.

Данный эффект объясняется нагреванием электронной подсистемы лазерным излучением, а проведенный в рамках двухтемпературной модели анализ демонстрирует значение константы электрон-электронного рассеяния $K_{ee} = (5.5 \pm 0.5) \text{ эВ}^{-2} \text{ фс}^{-1}$, что значительно превышает другие известные значения этой константы для серебра.

2) При одноимпульсной абляции серебряных пленок различной толщины (30 - 380 нм) остросфокусированными (микрообъективами с числовой апертурой $NA = 0.1 - 0.65$) ультракороткими лазерными импульсами видимого (515 нм) и ближнего ИК-диапазона (1030 нм) с длительностью ~ 300 фс, характерный гауссовский радиус области вложения энергии (абляции) на $\sim 0.5 - 1$ мкм превышает характерный гауссовский радиус пятна фокусировки $\sim 2 - 3$ мкм вследствие латеральной электронной теплопроводности на момент начала абляции.

3) На основе метода энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии предложен и применен способ профилометрического измерения радиального распределения массы расплава при одноимпульсной центрально-симметричной абляции металлических пленок фемтосекундными ультракороткими импульсами на длине волны 515 нм (видимый диапазон). С его помощью проведен анализ перераспределения массы расплава серебряной пленки толщиной ~ 100 нм в области фокального пятна и показаны количественные соотношения долей перемещенного и удаленного материала, например, уменьшение толщины пленки в 2 раза с одновременным увеличением в области центрального нанопикча в 5 раз при $F = 0.37 \text{ Дж/см}^2$ и частичным выбросом расплава в виде 2-3 нанокпель диаметром ~ 300 нм (массой ~ 2 пг).

4) Для метода прямой лазерной печати на поверхности серебряных пленок реализована высокая скорость записи – до $25 \cdot 10^6$ элементов/с - микроэлементов (микроотверстий диаметром $D = 2 - 6$ мкм и с периодами от 6 до 12 мкм) за счет использования дифракционно-оптического элемента – линейного раstra из $N=51$ микропучков – при скорости сканирования до 7 м/с и частоте следования импульсов $f = 500$ кГц.

СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ АВТОРА ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ**Статьи в рецензируемых научных журналах, индексируемых в базах данных Web of Science и Scopus**

1. Данилов П. А., Заярный Д. А., Ионин А. А., Кудряшов С. И., Руденко А. А., Кучмижак А. А., Витрик О. Б., Кульчин Ю. Н., Жаховский В. В., Иногамов Н. А. Перераспределение материала при фемтосекундной лазерной абляции тонкой серебряной пленки //Письма в ЖЭТФ. – 2016. – Т. 104. – №. 11. – С. 780-786.
2. Bezhanov S. G., Danilov P. A., Klekovkin A. V., Kudryashov S. I., Rudenko A. A., Uryupin S. A. Prompt increase of ultrashort laser pulse transmission through thin silver films //Applied Physics Letters. – 2018. – Т. 112. – №. 11. – С. 113104.
3. Danilov P. A., Drozdova E. A., Ionin A. A., Kudryashov S. I., Odinokov S. B., Rudenko A. A., Yurovskikh V. I., Zayarny D. A. Single-shot front-side nanoscale femtosecond laser ablation of a thin silver film //Applied Physics A. – 2014. Т. 117. – №. 3. – С. 981-985.
4. Данилов П. А., Заярный Д. А., Ионин А. А., Кудряшов С. И., Макаров С. В., Руденко А. А., Юровских В. И., Кульчин Ю. Н., Витрик О. Б., Кучмижак А. А., Дроздова Е. А., Одиноков С. Б. Механизмы формирования субмикро- и микромасштабных отверстий в тонких металлических пленках под действием одиночных нано-и фемтосекундных лазерных импульсов //Квантовая электроника. – 2014. – Т. 44. – №. 6. – С. 540-546.
5. Данилов П.А., Кудряшов С. И., Мигдал К. П., Ривнюк А. С., Ионин А. А. Усиление поглощения излучения интенсивных фемтосекундных лазерных импульсов видимого диапазона в пленке серебра // Письма в ЖЭТФ – 2021 – Т.113. - №6. – с. 299-303.
6. Kuchmizhak A. A., Porfirev A. P., Syubaev S. A., Danilov P. A., Ionin A. A., Vitrik O. B., Kudryashov S. I. Multi-beam pulsed-laser patterning of plasmonic films using broadband diffractive optical elements //Optics letters. – 2017. – Т. 42. – №. 14. – С. 2838-2841.

7. Kudryashov S. I., Danilov P. A., Porfirev A. P., Saraeva I. N., Nguyen T. H. T., Rudenko A. A., Khmel'nitskii R. A., Zayarny D. A., Ionin A. A., Kuchmizhak A. A., Khonina S. N., Vitrik O. B. (2019). High-throughput micropatterning of plasmonic surfaces by multiplexed femtosecond laser pulses for advanced IR-sensing applications. //Applied Surface Science. – 2019. – Т. 484. – С. 948-956.

Публикации в материалах научных конференций

1. P. A. Danilov, D.A Zayarny, A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, I. N. Saraeva, A.A. Rudenko. The femtosecond laser generation of regular arrays of nanostructures (nanospikes and nanoparticles based on them) on thin films of advanced nanoplasmonic materials. // International symposium FLAMN-16. 27 июня – 1 июля 2016: Программа, аннотации докладов секции «Laser-Matter Interaction». Санкт Петербург, Россия, 2016. С.38.
2. P. A. Danilov, E. P. Litovko, S. I. Kudryashov, A. A. Kuchmizhak, O. B. Vitrik, S. Ph. Umanskaya. High-performance femtosecond laser fabrication of plasmon elements using DOE. IV International Conference on Metamaterials and Nanophotonics METANANO-2017, 18-22 сентября, Владивосток, Россия, 2017 г. (<https://metanano.itmo.ru/2017/#program>); AIP Conference Proceedings. – AIP Publishing LLC, 2017. – Т. 1874. – №. 1. – p. 040004.
3. P. A. Danilov, S. I. Kudryashov, A. A. Kuchmizhak, A. A. Rudenko, S. N. Khonina, A. P. Porfirev, S. Ph. Umanskaya. High-throughput ablative pulsed-laser patterning of various nanoplasmonic films. 11th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications – ICPEPA 11, Programme Book of Abstracts, 10 – 14 September, 2018, Vilnius, Lithuania, p. 170, 2018.
4. P.A. Danilov, S.I. Kudryashov, A.A. Kuchmizhak, A.P. Porfirev, A.A. Rudenko and S.F. Umanskaya. High-precision direct laser processing of plasmonic films by a structured laser beam. Сборник тезисов конференции «International Conference on Ultrafast Optical Science», 01 – 05 октября 2018 г., г. Москва, Россия, с. 99, 2018.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ, ЦИТИРОВАННОЙ В АВТОРЕФЕРАТЕ

1. Genet C., Ebbesen T. W. Light in tiny holes // *Nature*. – 2007. – Т. 445. – №. 7123. – С. 39-47.
2. Melentiev, P. N., Konstantinova, T. V., Afanasiev., et al. Single nano-hole as a new effective nonlinear element for third-harmonic generation // *Laser Phys. Lett.* – 2013. – Т. 10. – №. 7. – С. 075901.
3. Koch, J., Korte, F., Bauer, T., et al. Nanotexturing of gold films by femtosecond laser-induced melt dynamics // *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process.* – 2005. – Т. 81. – №. 2. – С. 325-328.
4. Nakata Y., Okada T., Maeda M. Nano-sized hollow bump array generated by single femtosecond laser pulse // *Jpn. J. Appl. Phys.* – 2003. – Т. 42. – №. 12A. – С. L1452.
5. Moening J. P., Georgiev D. G. Formation of conical silicon tips with nanoscale sharpness by localized laser irradiation // *J. Appl. Phys.* – 2010. – Т. 107. – №. 1. – С. 014307.
6. Pronko, P. P., Dutta, S. K., Squier, et al. Machining of sub-micron holes using a femtosecond laser at 800 nm // *Opt. Commun.* – 1995. – Т. 114. – №. 1-2. – С. 106-110.
7. Guo, Z., Feng, J., Zhou, K., et al. The formation of different structures in the interaction between a single femtosecond laser pulse and a thin Au film // *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process.* – 2012. – Т. 108. – №. 3. – С. 639-644.
8. Moening J. P., Thanawala S. S., Georgiev D. G. Formation of high-aspect-ratio protrusions on gold films by localized pulsed laser irradiation // *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process.* – 2009. – Т. 95. – №. 3. – С. 635-638.
9. Willis D. A., Grosu V. Microdroplet deposition by laser-induced forward transfer // *Appl. Phys. Lett.* – 2005. – Т. 86. – №. 24. – С. 244103.
10. Иногамов Н. А., Жаховский В. В., Хохлов В. А. Струеобразование при отрыве металлической пленки от подложки в результате воздействия фемтосекундного лазерного импульса // *ЖЭТФ* – 2015. – Т. 147. – №. 1. – С. 20-56.

11. Banks, D. P., Grivas, C., Mills, J. D., et al. Nanodroplets deposited in microarrays by femtosecond Ti: sapphire laser-induced forward transfer / *Appl. Phys. Lett.* – 2006. – Т. 89. – №. 19. – С. 193107.
12. Kuznetsov A. I., Koch J., Chichkov B. N. Laser-induced backward transfer of gold nanodroplets // *Opt. Express.* – 2009. – Т. 17. – №. 21. – С. 18820-18825.
13. Sinton D., Gordon R., Brolo A. G. *Microfluid. Nanofluid.* 4, 107 (2008).
14. Gordon, R., Brolo, A. G., Sinton, D., et al. Optical properties of hole-arrays in metal films // *Laser and Photonics Rev.* – 2010. – Т. 4. – С. 311-335.
15. Neubrech, F., Pucci, A., Cornelius, T. W., et al. Resonant plasmonic and vibrational coupling in a tailored nanoantenna for infrared detection // *Phys. Rev. Lett.* – 2008. – Т. 101. – №. 15. – С. 157403.
16. Kuchmizhak, A., Gurbatov, S., Nepomniaschiy, A., et al. Hydrodynamic instabilities of thin Au/Pd alloy film induced by tightly focused femtosecond laser pulses // *Appl. Surf. Sci.* – 2015. – Т. 337. – С. 224-229.
17. Nakata Y., Miyanaga N., Okada T. Effect of pulse width and fluence of femtosecond laser on the size of nanobump array // *Appl. Surf. Sci.* – 2007. – Т. 253. – №. 15. – С. 6555-6557.
18. Kuznetsov A. V., Nield, D. A. Natural convective boundary-layer flow of a nanofluid past a vertical plate // *Int. J. Therm. Sci.* – 2010. – Т. 49. – №. 2. – С. 243-247.
19. Иногамов Н. А., Жаховский В. В. Формирование наноразмерных струек и капель ультракоротким лазерным импульсом при фокусировке на дифракционном пределе // *Письма в ЖЭТФ* – 2014. – Т. 100. – №. 1. – С. 6-12.
20. Иногамов, Н. А., Петров, Ю. В., Хохлов, В. А., & Жаховский, В. В. Лазерная абляция: физические представления и приложения (обзор) // *ТВТ* – 2020. – Т. 58. – №. 4. – С. 689-706.
21. Groeneveld R. H., Sprik R., Lagendijk A. Femtosecond spectroscopy of electron-electron and electron-phonon energy relaxation in Ag and Au // *Phys. Rev. B.* – 1995. – Т. 51. – №. 17. – С. 11433.
22. E.D. Palik (Ed.), *Handbook of Optical Constants of Solids*, Academic Press, 1998.