

«УТВЕРЖДАЮ»

Директор Института теоретической  
Физики им. Л.Д. Ландау Российской  
академии наук

Ф.Ф. -м. н., доцент

Колоколов Игорь Валентинович



1 » июня 2021 г.

## ОТЗЫВ ВЕДУЩЕЙ ОРГАНИЗАЦИИ

**на диссертационную работу Данилова Павла Александровича «Прецизионное лазерное микро- и наноструктурирование серебряных пленок», представленную к защите на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.21 — Лазерная физика**

### 1. Общая характеристика работы

Применение лазеров с импульсами различной длительности и энергетикой для структурирования поверхности мишени из разных материалов является важным направлением среди современных лазерных технологий. Структурированные таким образом поверхности имеют самый широкий спектр применений от биологии и медицины до электроники и метаоптики.

В диссертации П. А. Данилова рассматривается вариант подхода к поверхностному структурированию, опирающийся на использование фемтосекундных лазерных импульсов.

В случае таких импульсов при воздействии на металлы необходимо учитывать разделение электронной и ионной подсистем металла. Электроны нагреваются в течение лазерного импульса. Полученная электронами энергия приводит к повышению температуры электронной подсистемы. Горячие электроны передают тепло ионам. Ионы тяжелые, их масса намного превышает массу электрона. Поэтому электрон-ионные столкновения являются квазиупругими, энергии при столкновении сообщается мало, требуются тысячи столкновений, и электрон-ионная температурная релаксация затягивается на пикосекундные времена. В случае фемтосекундных импульсов релаксация не поспевает за темпом ввода энергии в электронную подсистему лазером. Таким образом, становится необходимым исследовать физику двухтемпературных состояний. Это тематика лежит в центре интересов нашего сектора со времен первой работы по двухтемпературной физике лазерного воздействия: С. И. Анисимов и др., ЖЭТФ 1974. С. И. Анисимов был руководителем сектора с 1965 по 2019 год.

Именно исследованиям такого рода посвящена часть диссертационной работы Данилова П. А. Весьма важно то, что Данилов П. А. привносит в научный оборот свои



результаты по *экспериментальному* анализу двухтемпературных явлений. Теоретических работ в этой области достаточно, а вот опыты сопряжены с большими трудностями.

Целью диссертационной работы Данилова П.А. являлись именно количественные исследования основных стадий формирования нано- и микрорельефа на поверхности металлических пленок ультракороткими лазерными импульсами видимого и ближнего ИК-диапазонов, начиная с процессов вложения энергии лазером и последующей передачи поглощенной энергии в ионную подсистему; т.е. начиная с двухтемпературной физики процессов – это первая стадия.

Далее в диссертации описываются термомеханические процессы образования структур – вторая стадия.

## 2. Конкретные результаты

В работе рассмотрены серебряные пленки в диапазоне толщин от 30 нм до 380 нм. Исследовано пропускание (transmittance), отражение и поглощение фемтосекундных импульсов с длинами волн 1030 нм (1-я гармоника) и 515 нм (2-я гармоника).

Изучено влияние фокусировки на процессы теплопереноса в пленках.

Количественно охарактеризовано, каким образом происходит перераспределение материала пленки вследствие лазерного воздействия, а также исследованы поглощение излучения, двухтемпературная стадия, выравнивание температур, плавление, движение жидкой фазы, кристаллизация расплава назад в твердое состояние. Для измерений применен метод энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (ЭДРС).

## 3. Содержание диссертации

В диссертационной работе Данилова П. А. дается достаточно подробный обзор имеющихся на сегодня публикаций, посвященных физике двухтемпературных состояний и лазерной абляции при воздействии фемтосекундных импульсов умеренной интенсивности. Поиск по литературе, выполненный соискателем, показывает, что значительная часть работ по физике двухтемпературных состояний имеет теоретический характер. При этом экспериментальных работ с количественными оценками параметров и констант, необходимых для создания уточненных теоретических моделей, недостаточно.

Для ознакомления с диссертационной работой было проведено несколько онлайн совещаний сотрудников сектора плазмы и лазеров ИТФ им. Ландау РАН с соискателем. Чтение диссертации и автореферата вместе с онлайн обсуждениями ведет к заключению об несомненной **актуальности** исследований, проведенных Даниловым П. А. Результаты опубликованы в высокорейтинговых журналах и были представлены на международных конференциях. Все это говорит о высокой значимости диссертации Данилова П. А. Работа выполнена на высоком уровне, содержит много ценных экспериментальных данных.

Структурно диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, заключения и списка литературы из 129 наименований. Объем диссертации составляет 107 страниц, включая 34 рисунка и 2 таблицы.

**Во введении** рассмотрена актуальность диссертационной работы, основные цели, задачи и методы исследований, научная новизна, защищаемые положения и практическая значимость полученных результатов.



**Глава 1** посвящена обзору литературы. Описаны стадии взаимодействия лазерных импульсов ультракороткой длительности с металлами, включая процессы вложения и транспорта энергии, электронную динамику, а также механизмы формирования поверхностного рельефа. Описаны преимущества и недостатки методов, представлен широкий круг применений. Говорится об основных физических моделях, используемых при описании электронной релаксации в металлах. Поставлены задачи диссертационной работы и указаны пути их решения.

В **Главе 2** приведены схемы экспериментальных установок, их описание, методики проведения экспериментов и измерений, перечислено примененное оборудование и используемые материалы.

В **Главе 3** представлены экспериментальные исследования механизмов поглощения и передачи энергии лазерных импульсов путем теплопроводности при взаимодействии с тонкими металлическими (серебряными) пленками в сильно неравновесном состоянии, когда электронная температура значительно превышает температуру ионной подсистемы (решетки).

(\*) Экспериментально обнаружено увеличение пропускания УКИ ближнего ИК-диапазона (1030 нм, 300 фс) при росте интенсивности для серебряных пленок толщиной 40 – 125 нм.

Это парадоксальный результат, который противоречит физической интуиции. Поэтому он требует отдельного рассмотрения. Замечания по этому поводу имеются в пункте 4 «Критические замечания по диссертационной работе».

Изучено формирование микроотверстий на тонкой серебряной пленке под действием фемтосекундного импульса УКИ видимого диапазона (515 нм) при различных условиях фокусировки микрообъективами с  $NA = 0.1 - 0.65$ . Анализ структур на сканирующем электронном микроскопе (СЭМ) показывает, что размер отверстия в пленке приблизительно на 1 мкм превышает размер кратера в стеклянной подложке. Так как теплопроводность металла (серебра) и стекла сильно отличаются, то кратер в стекле характеризует реальную фокусировку оптической системы.

В диссертации говорится, что на конечный размер отверстия в серебряной пленке существенное влияние оказывает латеральный теплоперенос (комментарий по этому поводу приведен в пункте 4 «Критические замечания по диссертационной работе»).

Даниловым П. А. на примере микроструктур на серебряных пленках предложен и применен способ количественной оценки перераспределения массы расплава вещества по радиально-симметричным профилям структур. Данный способ основан на ЭДРС измерениях.

**Глава 4** посвящена формированию микро- и нанорельефа на поверхности металлических пленок структурированным по интенсивности фемтосекундным лазерным пучком и рассмотрены некоторые применения лазерной печати. Так, для формирования сложных отпечатков используются дифракционно-оптические элементы.

Соискатель продемонстрировал высокую производительность формирования функциональных массивов из микроотверстий за счет использования мультиплексоров единого лазерного пучка в 51 отдельную точку, т.е. имеет место расщепление одного пучка на 51 пучок, которые фокусируются в разные точки. Этих точек 51. В результате скорость записи достигла рекордных значений – до 25 млн. элементов в секунду. Данный



результат весьма существен для технологических приложений, поскольку намного повышает производительность лазерной печати.

**В Заключении** приведены основные результаты работы.

#### **4. Критические замечания по диссертационной работе**

Как и обычно всякая большая работа, диссертация, на наш взгляд не свободна от недостатков.

(4.1) При написании уравнений двухтемпературной тепловой модели металла при воздействии ультракоротких лазерных импульсов в уравнении (1.12) слагаемое, описывающее передачу энергии от электронов ионам, ошибочно написано со знаком “минус”. При дальнейшем изложении, например, в уравнении (1.15), знак этого слагаемого уже правильный.

(4.2) Вызывает вопрос выражение (1.9), в котором коэффициент электронной теплопроводности металла в двухтемпературном случае растет линейно с температурой ионов. В рассмотренном здесь случае, когда электронная теплоемкость линейно зависит от электронной температуры, а частота электрон-фононных столкновений для твердого металла прямо пропорциональна ионной температуре, коэффициент электронной теплопроводности пропорционален температуре электронов и обратно пропорционален температуре ионов.

(4.3) В формуле (3.10) показана не диэлектрическая проницаемость в форме Друде, а ее отличие от единицы (эквивалентное выражению (3.7)), к тому же первое слагаемое при этом ошибочно написано с положительным знаком.

(4.4) Замечание, которое относится к фразе «Это парадоксальный результат, который противоречит физической интуиции» из раздела 3 отзыва. Она отмечена значком (\*).

Здесь будет правильно привести историю того, как диссертация Данилова П.А. была принята сектором на отзыв. Первичное знакомство с работой, особенно с пунктом 1 научной новизны автореферата вызвало резкое неприятие.

Действительно, представлялась следующая картина. С ростом поглощенной энергии растет частота столкновений. Соответственно, пленка «мутнеет» - снижаются как коэффициент отражения, так и коэффициент пропускания. Это казалось очевидным. Чтобы доказать это соискателю, заместитель заведующего нашего сектора д.ф.-м.н. Юрий Васильевич Петров выполнил расчеты для серебра по нашей модели двухтемпературных состояний серебра, представленной в работе [Petrov Y. V. et al. Reflectance of thin silver film on the glass substrate at the interaction with femtosecond laser pulses //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2016. – Т. 774. – №. 1. – С. 012099.].

В расчетах рассматривался однородный прогрев пленки серебра (справедливо для пленок не толще 50-70 нм), учитывался вход пучка из воздуха в пленку серебра заданной толщины, отражение/прохождение на нижней границе пленки на контакте пленки со стеклянной подложкой и выход пучка из стекла на измеритель мощности.



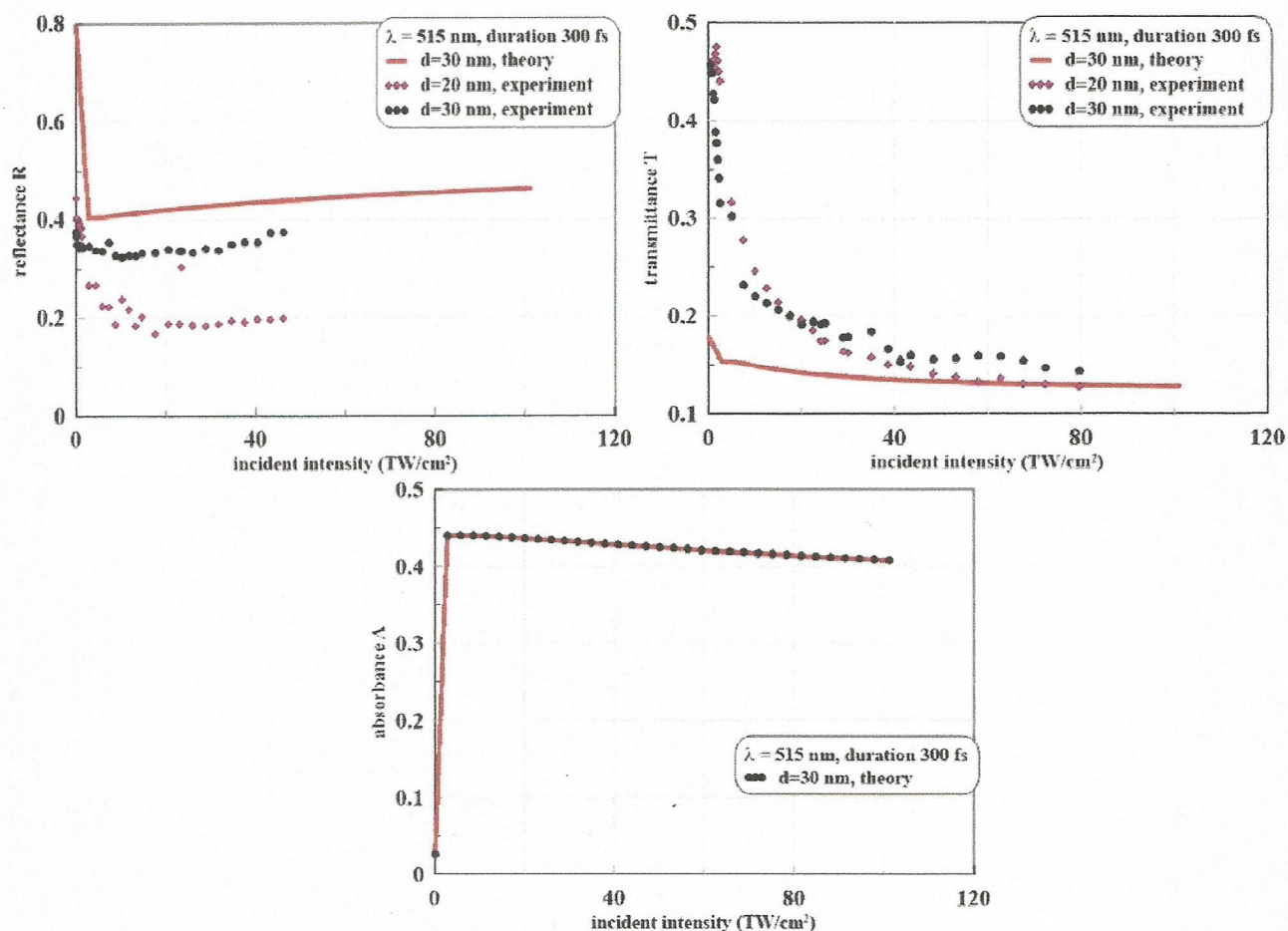


Рисунок 1. Расчеты отражения, пропускания и поглощения серебряных пленок толщиной 20 и 30 нм при возбуждении лазерными импульсами с длиной волны 515 нм и длительностью 300 фс.

Расчеты выполнены для 2-й гармоники (515 нм) и пленок серебра толщиной 20 и 30 нм. (указаны на вставках) и представлены на рисунке 1. Сравниваются теория и экспериментальные данные, полученные П. А. Даниловым. Бросается в глаза резкое изменение оптических параметров по сравнению со значениями при комнатных температурах уже при интенсивностях в единицы  $\text{ТВт}/\text{см}^2$ , что соответствует плотностям энергии  $\sim 300 \text{ мДж}/\text{см}^2$ . При поглощенных энергиях уже около 20-30  $\text{мДж}/\text{см}^2$  пленку отрывает от подложки за гидродинамические времена порядка 10 пс. При этом пропускание через пленку на длине волны 515 нм снижается с ростом энергии, что согласуется с экспериментальными результатами диссертационной работы.

Аналогичные расчеты (рисунок 2) были проведены для длины волны 1030 нм и также сравнивались с экспериментальными данными, полученными П. А. Даниловым.



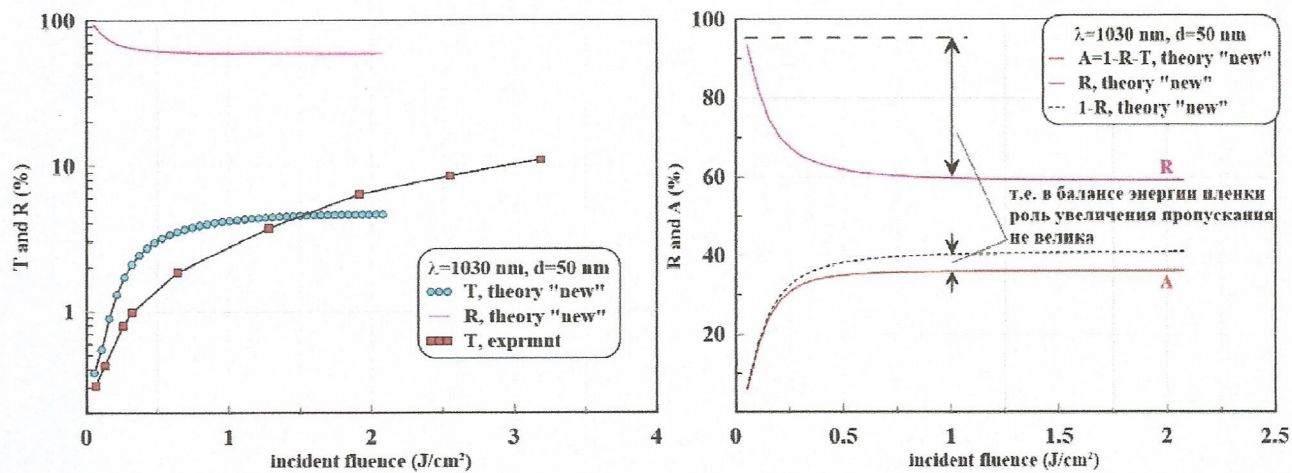


Рисунок 2. Теоретическое моделирование пропускания (Т) и отражения (R) от серебряной пленки для длины волны 1030 нм. Слева сравнение данных с пропусканием согласно данным диссертационной работы.

Каково же было изумление сотрудников сектора, когда наш расчет показал увеличение пропускания с ростом энергии! Обнаружив такое, сектор принял диссертационную работу П. А. Данилова для составления на нее отзыва ведущей организации.

Считаем, что это замечательный результат опытов, выполненных Даниловым П. А.

Также в качестве пожелания на будущее стоит отметить отсутствие данных по отражению лазерных импульсов от серебряных пленок на длине волны 1030 нм.

(4.5) Конечно, несколько обидно то, что наши результаты, имеющие самое непосредственное отношение к диссертации, остались без внимания соискателя. Это относится к образованию нанокристаллитов, указанных на рис. 3.11 диссертации. В тексте отсутствует ссылка на нашу работу [Inogamov N. A., Zhakhovsky V. V., Khokhlov V. A. Laser ablation caused by geometrically constrained illumination and inventive target design //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2018. – Т. 946. – №. 1. – С. 012008.] с численным моделированием образования таких структур. При быстром охлаждении кристаллиты растут преимущественно по направлению градиента температуры, т.е. в направлении вектора потока тепла.



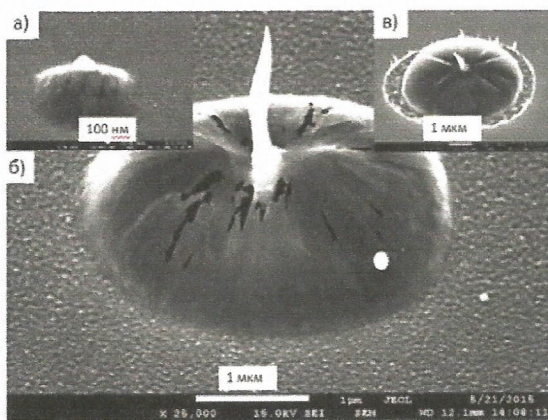


Figure 11. Instant 2.2 ns (as in figure 10).



Figure 12. Instant 4.3 ns,  $x-y$  plane. The structure of the laminated crystallites is established (compare with figure 11).

Рисунок 3. Слева рисунок 3.11 из диссертационной работы, справа в цвете – рисунок из нашей работы.

### Заклучение

Тема диссертации весьма актуальна. Полученные в работе результаты являются новыми и оригинальными. Их достоверность обусловлена использованием сертифицированного оборудования, хорошей воспроизводимостью и апробацией на ряде международных конференций. Результаты работы опубликованы в 7 научных статьях в рецензируемых научных журналах, индексируемых в базах данных Web of Science и Scopus.

Подчеркну, что список публикаций П. А. Данилова включает 57 (!) статей (все эти статьи входят в базу данных Web of Science). Другими словами, в диссертации представлена лишь небольшая часть трудов соискателя.

Результаты, полученные в работе Данилова П. А., могут быть рекомендованы для использования в исследованиях ФИАН, ИТФ им. Ландау РАН, ИОФАН, ИТМО, МИФИ и ряда других научных учреждений.

Приведенные замечания не влияют на общую очень высокую положительную оценку диссертационной работы.

Диссертация П.А. Данилова имеет важное значение для исследования взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов с металлами.

Представляется выдающимся результатом с повышением пропускания (пленка становится «прозрачнее») с ростом энергии импульса и соответственно с ростом частоты столкновений. Хочется также отметить ту высочайшую квалификацию, которую проявил Павел Александрович, измеряя диаметры лазерных пучков на дифракционном пределе и определяя химический состав поверхности пятна воздействия с помощью ЭДРС.

Тематика диссертационной работы соответствует специальности 01.04.21 «Лазерная физика». Текст автореферата правильно отражает содержание работы. Список цитируемой литературы соответствует содержанию.

Все вышесказанное дает основание считать, что представленная Даниловым Павлом Александровичем диссертация «Прецизионное лазерное микро- и наноструктурирование серебряных пленок» полностью удовлетворяет всем требованиям «Положения о присуждении ученых степеней», утвержденного постановлением Правительства Российской Федерации № 842 от 24 сентября 2013 г., а её автор Данилов



Павел Александрович заслуживает присуждения ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.21 — Лазерная физика.

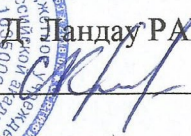
Доклад автора по материалам диссертации был представлен 27 мая 2021 года на дистанционном (в ZOOM) семинаре сектора «Плазмы и лазеров» Института теоретической физики им. Л.Д. Ландау Российской академии наук (ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН).

Отзыв на диссертацию был составлен научным сотрудником сектора «Плазмы и лазеров», кандидатом физико-математических наук Хохловым Виктором Александровичем и утвержден на заседании Ученого совета ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН 04 июня 2021 года.

Научный сотрудник сектора «Плазмы и лазеров» ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН, кандидат физико-математических наук,

 Хохлов Виктор Александрович.

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Институт теоретической физики им. Л.Д. Ландау Российской академии наук (ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН) 142432, МО, г. Черноголовка, просп. Академика Семенова, д. 1-А, тел.: (+7 495) 702-93-17, e-mail: [office@itp.ac.ru](mailto:office@itp.ac.ru)

Ученый секретарь ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН  
кандидат химических наук  Крашаков Сергей Александрович

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Институт теоретической физики им. Л.Д. Ландау Российской академии наук (ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН) 142432, МО, г. Черноголовка, просп. Академика Семенова, д. 1-А, тел.: +7 (495) 702-93-17, e-mail: [office@itp.ac.ru](mailto:office@itp.ac.ru)



Список основных публикаций сотрудников Института теоретической физики им. Л.Д. Ландау РАН по теме диссертации Данилова П.А. в рецензируемых научных изданиях за последние 5 лет:

1. С.А. Ромашевский, В.А. Хохлов, С.И. Ашитков, В.В. Жаховский, Н.А. Иногамов, П.С. Комаров, А.Н. Паршиков, Ю.В. Петров, Е.В. Струлева, П.А. Цыганков, Фемтосекундное лазерное воздействие на многослойную наноструктуру металл–металл, // Письма в ЖЭТФ, - 2021 - 113 (5) - 311-319.
2. Inogamov N. A. Khokhlov V. A., Petrov Y. V., & Zhakhovsky V. V. Hydrodynamic and molecular-dynamics modeling of laser ablation in liquid: from surface melting till bubble formation //Optical and Quantum Electronics. – 2020. – Т. 52. – №. 2. – С. 1-24.
3. Shepelev V. V., Inogamov N. A., Fortova S. V. Thermal and dynamic effects of laser irradiation of thin metal films //Optical and Quantum Electronics. – 2020. – Т. 52. – №. 2. – С. 1-21.
4. Inogamov N. A. Petrov Y. V., Khokhlov V. A., Zhakhovskii V. V. Laser Ablation: Physical Concepts and Applications //High Temperature. – 2020. – Т. 58. – №. 4. – С. 632-646.
5. Anisimov S. I. Zhakhovsky V. V., Inogamov N. A., Murzov, S. A., &Khokhlov V. A. Formation and crystallisation of a liquid jet in a film exposed to a tightly focused laser beam //Quantum Electronics. – 2017. – Т. 47. – №. 6. – С. 509.
6. Rethfeld B. Ivanov D. S., Garcia M. E., Anisimov, S. I. Modelling ultrafast laser ablation //Journal of Physics D: Applied Physics. – 2017. – Т. 50. – №. 19. – С. 193001.
7. Петров Ю. В., Мигдал, К. П., Иногамов Н. А., Анисимов С. И. Процессы переноса в металле с горячими электронами, возбужденными лазерным импульсом //Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2016. – Т. 104. – №. 6. – С. 446-454.
8. Kuchmizhak A. et al. Laser printing of resonant plasmonic nanovoids //Nanoscale. – 2016. – Т. 8. – №. 24. – С. 12352-12361.
9. Inogamov N. A., Zhakhovsky V. V., Migdal K. P. Laser-induced spalling of thin metal film from silica substrate followed by inflation of microbump //Applied Physics A. – 2016. – Т. 122. – №. 4. – С. 432.
10. Migdal K. P. et al. Heat conductivity of copper in two-temperature state //Applied Physics A. – 2016. – Т. 122. – №. 4. – С. 1-5.