

ЛАЗЕРНАЯ АБЛЯЦИЯ МЕТАЛЛОВ ПИКОСЕКУНДНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ НИЗКОЙ ПЛОТНОСТИ

И. Н. Завестовская^{1,2}, А. П. Канавин^{2,1}

Определены пороги лазерной абляции металлов для пикосекундного диапазона длительности лазерного импульса. В рамках двухтемпературной модели металла получены пространственно-временные зависимости электронной и решеточной температуры. Показано, что при длительности импульса $\tau_p \geq \tau_{ie}$, где τ_{ie} – время охлаждения электронного газа, абляционные параметры начинают зависеть от длительности импульса. Для благородных металлов такие длительности импульса соответствуют $\tau_p \approx 3 - 10$ пс.

Ключевые слова: абляция, пикосекундные лазерные импульсы, двухтемпературная модель металла.

Введение. Лазерные технологии производства поверхностных и объемных наноструктур и наночастиц под воздействием ультракоротких лазерных импульсов находят все более широкий спектр применений [1–3]. Особый интерес представляют наночастицы металлов, и в частности золота и других благородных металлов. Их исключительные оптические свойства стимулируют интерес к исследованиям возможностей их применения в оптике, фотонике, а так же биомедицине [4]. Лазерная абляция показала себя как один из наиболее эффективных физических методов наноструктурирования различных материалов и производства наночастиц [5–7]. Однако при использовании лазерных методов формируются достаточно крупные наночастицы с широким распределением по размерам. В связи с этим для уменьшения размера наночастиц их коллоиды подвергают дополнительной обработке лазерными импульсами ультракороткой длительности [8, 9]. В [10] представлена теоретическая модель процессов фрагментации наночастиц золота в воде под действием фемтосекундных лазерных импульсов.

¹ Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», 115409 Россия, Москва, Каширское ш., 31.

² ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: kanavin@sci.lebedev.ru.

Целью нашей работы являлось теоретическое исследование нагрева металлов, и в частности золота, под воздействием пикосекундных лазерных импульсов.

Лазерная абляция металлов пикосекундными импульсами низкой плотности. Физическая картина абляции металлов в пикосекундном диапазоне качественно отличается от фемтосекундной лазерной абляции. В пикосекундном диапазоне $\tau_p \approx 1 - 10$ пс длительность импульса становится сравнима с типичным временем охлаждения электронного газа металла

$$\tau_{ie} \approx \frac{C_e}{C_i} \tau_{ei}, \quad (1)$$

C_e, C_i – теплоемкости электронов и решетки.

Порог абляции F_{th} , глубина абляции d , электронная температура $T_e(x, t)$ и температура решетки (ионов) $T_i(x, t)$ начинают зависеть от длительности импульса τ_p , если [11]:

$$\tau_p \geq \tau_{ie} = \frac{3}{2} \alpha^2 \left(\frac{F}{F_0} \right)^2 \frac{\tau_0 \tau_{ei}^2}{\tau_p^2}, \quad F_0 = C'_e T_F^2 V_F \tau_{0e}, \quad (2)$$

где F – плотность поглощённой энергии.

Рассмотрим пространственно-временную динамику температур электронов и решетки (ионов) при условии:

$$\eta \frac{T_i}{T_e} < \frac{T_e}{T_F} < 1, \quad \eta = \frac{\tau_{0e}}{\tau_{0i}}. \quad (3)$$

В этом случае главный вклад в процессы электронной релаксации осуществляется за счёт электрон-электронных столкновений с характерным временем:

$$\tau_{ee} \approx t_{0e} \left(\frac{T_F}{T_e} \right)^2. \quad (4)$$

В безразмерных переменных:

$$f_{e,i} = \left(\frac{T_{e,i}}{T_F} \right)^2, \quad \tau = \frac{t}{\tau_p}, \quad z = \frac{x}{x_0}, \quad x_0 = \frac{1}{\sqrt{3}} V_F \tau_{0e} \cdot \tau_p, \quad \beta = \frac{\tau_p}{\tau_{ei}},$$

$$\alpha = \frac{C'_e T_F}{C_i}, \quad \Phi = \frac{\Phi_0}{\beta^{1/2}}, \quad \Phi_0 = \sqrt{3} \left(\frac{\tau_{0e}}{\tau_{ie}} \right)^{1/2} \frac{F}{F_0}$$

система уравнений двухтемпературной модели для электронной и решёточной подсистем металла может быть представлена в виде:

$$\begin{aligned} \frac{\partial f_e}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial z} f_e^{-1} \frac{\partial f_e}{\partial z} - 2 \frac{\beta}{\alpha} \left(f_e^{1/2} - f_i^{1/2} \right), \\ - f_e^{-1} \frac{\partial f_e}{\partial z} \Big|_{z=0} &= 2\Phi, \end{aligned} \quad (5)$$

$$\frac{\partial f_i}{\partial t} = 2\beta f_e^{1/2}(f_e^{1/2} - f_i^{1/2}),$$

$$f_e(z, 0) = f_i(z, 0) = 0.$$

Так как теплоемкость электронного газа металлов много меньше теплоемкости решетки

$$\frac{C_e}{C_i} = \alpha \frac{T_e}{T_F} \ll \alpha \sim 1,$$

электронная температура при относительно коротких импульсах $\beta \ll 1$ в момент времени $t \approx \tau_p$, ($\tau \approx 1$) становится много больше чем ионная. Предположим, что параметры лазерного импульса ($F, \beta \ll 1$) в течение времени $t \leq \tau_p$, ($\tau \leq 1$) будут такие, что $\frac{f_i^{1/2}}{f_e^{1/2}} - \frac{T_i}{T_e} \ll 1$. Тогда двухтемпературная система уравнений распадается на 2 независимых уравнения:

$$\frac{\partial f_e}{\partial \tau} = \frac{\partial}{\partial z} f_e^{-1} \frac{\partial f_e}{\partial z} - 2 \frac{\beta}{\alpha} f_e^{1/2},$$

$$- \frac{1}{f_e} \frac{\partial f_e}{\partial z} \Big|_{z=0} = \Phi, \quad (6)$$

$$f_e(z, 0) = 0,$$

$$\frac{\partial f_i^{1/2}}{\partial \tau} = \beta f_e^{1/2}, \quad (7)$$

$$f_i(z, 0) = 0.$$

Для “коротких” пикосекундных импульсов $T_i/T_e \ll 1$ в диапазоне $\left(\frac{\alpha}{2}\right)^{1/2} < \Phi_0 < \beta \leq \left(\frac{1}{2}\alpha^2\Phi_0^2\right)^{1/3}$, что для Au при $F = 50$ мДж/см² соответствует области $0.2 < \beta \leq 0.4$, получаем:

$$f_e^{1/2}(0, \tau) = \frac{\alpha/\beta^2\Phi_0^2x}{1+x}; \quad x = \left(\frac{\tau}{\tau_y}\right)^{1/2} \leq \frac{1}{\tau_y^{1/2}} \leq 1, \quad \tau \leq 1,$$

$$f_i^{1/2}(0, \tau) = \frac{1}{3} \frac{\alpha^3}{\beta^4} \Phi_0^4 x^3 \left(1 - \frac{3}{4}x\right). \quad (8)$$

Температура поверхности является монотонно возрастающей со временем функцией во всем интервале $\tau \leq 1$ и не переходит в стационарный режим.

Для длинных импульсов нельзя пренебречь электрон-ионной релаксацией, и температура решетки может быть сравнима с температурой электронного газа, т.е. $T_e \sim T_i$. Температура решетки в обоих случаях “коротких” и “длинных” пикосекундных импульсов определяется выражением (8). Временная эволюция разницы поверхностных

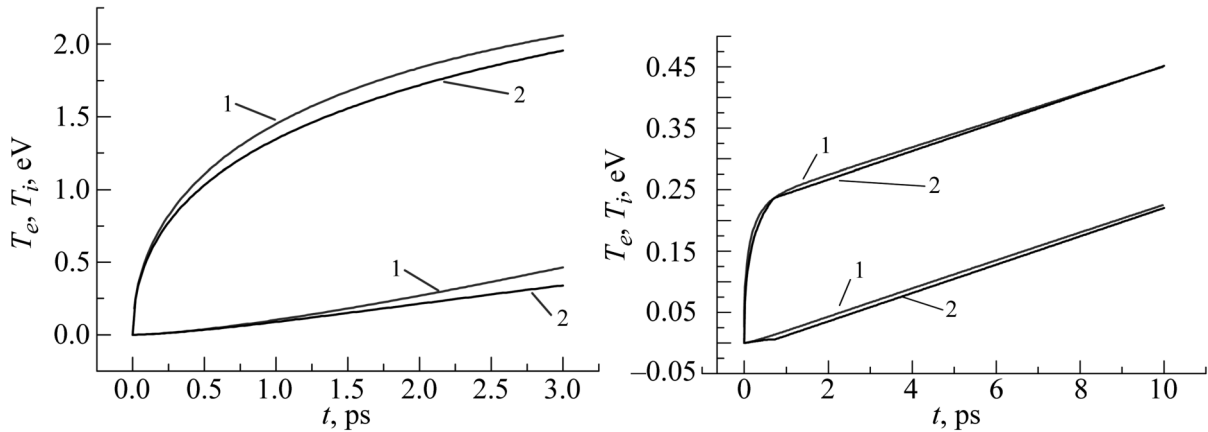


Рис. 1: Зависимость электронной температуры и поверхностной температуры решетки для Au при $F = 50 \text{ мДж/см}^2$ и $\tau = 3 \text{ пс}$ ($\beta = 0.3; 1.0$). Линия 1 соответствует аналитической зависимости, 2 – численному решению.

Рис. 2: Зависимость электронной температуры и поверхностной температуры решетки для Au при $F = 50 \text{ мДж/см}^2$ и $\tau_p = 10 \text{ пс}$ ($\beta = 0.3; 1.0$). Линия 1 соответствует аналитической зависимости, линия 2 – численному решению.

температур для случая длинных импульсов формально соотносится с поведением электронной поверхностной температуры для коротких импульсов во всем интервале $\tau \leq 1$. Рис. 1 и 2 показывают разницу зависимости электронной температуры и поверхностной температуры решетки для Au при $F = 50 \text{ мДж/см}^2$ для двух значений β . Линия 1 соответствует аналитической зависимости, линия 2 – численному решению. Аналитическое описание хорошо согласуется с частными численными расчетами.

Таким образом, если $\tau_p \geq \tau_{ie}$, то абляционные параметры начинают зависеть от длительности импульса τ_p .

Рис. 3 иллюстрирует зависимость порогового потока от длительности импульса для Au. Как отмечалось выше, механизм поверхностного испарения в вакуум и соответствующее выражение для глубины абляции

$$d \approx \frac{b}{\sqrt{2 \cdot \pi}} \cdot \int_0^{\infty} \sqrt{\frac{T_i(t)}{m_i}} \exp\left(-\frac{U_0}{T_i(t)}\right) dt \quad (9)$$

справедливы, если решеточная температура поверхности T_i ниже критической температуры металла $T_{cr} \approx (0.1 - 0.2)U_0$ (U_0 – энергия испарения на один атом). Для золота эта величина температуры может оказаться близкой к критической $T_{cr} \geq 0.42 \text{ эВ}$: при

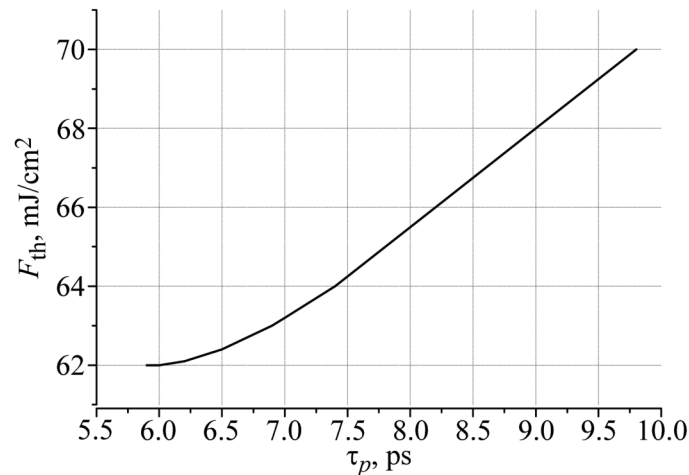


Рис. 3: Зависимость порогового значения плотности лазерной энергии от длительности импульса для Au.

плотностях поглощённой энергии F , превышающих пороговую F_{th} , максимальное значение ионной температуры поверхности заведомо достигает критического значения. В этом случае двухтемпературная модель металла и выражение (9) не могут быть использованы.

Процесс абляции при плотностях энергии таких, что температура поверхностного слоя металла близка к критической, $T_i \approx T_{cr}$, определяется гидродинамическим движением нагретого вещества с плотностью, близкой к металлической.

Заключение. Исследован режим абляции, возникающий при воздействии ультракоротких лазерных импульсов низкой плотности энергии. Анализ выполнен в рамках двухтемпературной модели металлов для пикосекундной длительности лазерных импульсов. Показано, что пороговое значение потока энергии F_{th} не зависит от длительности импульса τ_p при условии $\tau_p \sim \tau_{ie}$, где τ_{ie} – время охлаждения электронного газа. Например, для Au режим абляции, когда пороговая энергия абляции не зависит от длительности импульса, наблюдается при $\tau_p \sim 3$ пс. Если $\tau_p \geq \tau_{ie}$, то абляционные параметры начинают зависеть от длительности импульса τ_p – реализуется так называемый “пикосекундный режим” абляции. Для Au пикосекундный режим абляции будет реализовываться при длительности импульса $\tau_p \approx (3 - 10)$ пс. Аналитическое описание находится в хорошем согласовании с численными расчетами и экспериментальными результатами.

Работа была поддержана проектом Минобрнауки РФ (госзадание № 16.7917.2017/8.9).

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] I. N. Zvestovskaya, *Laser and Particle Beams* **28**, 437 (2010).
- [2] И. Н. Завестовская, *Квантовая электроника* **40**(11), 942 (2010).
- [3] A. V. Kabashin, Ph. Delaporte, A. Pereira, et al., *Nanoscale Res. Lett.* **5**, 454 (2010).
- [4] P. N. Prasad, *Introduction to Biophotonics* (Boston, Wiley-Interscience, 2003).
- [5] Yu. V. Afanasiev, V. A. Isakov, I. N. Zvestovskaya, et al., *Appl. Phys. A* **64**, 561 (1997).
- [6] I. N. Zvestovskaya, P. G. Eliseev, O. N. Krokhin, N. A. Men'kova, *Appl. Phys. A* **92**, 903 (2008).
- [7] A. V. Kabashin, M. Meunier, *Recent Advances in Laser Processing of Materials* (Amsterdam, Elsevier, 2006).
- [8] Ф. Бозон-Вердюра, Р. Брайнер, В. В. Воронов и др., *Квантовая электроника* **33**(8), 714 (2003).
- [9] Hitomi Muto, Ken Miyajima, and Fumitaka Mafune, *J. Phys. Chem. C* **112**, 5810 (2008).
- [10] И. Н. Завестовская, А. П. Канавин, С. Д. Махлышева, *Краткие сообщения по физике ФИАН* **40**(12), 14 (2013).
- [11] A. P. Kanavin, I. V. Smetanin, V. A. Isakov, et al., *Phys. Rev. B* **57**, 14698 (1998).

Поступила в редакцию 27 декабря 2017 г.