

ТЕРМИЧЕСКОЕ ПЛАВЛЕНИЕ И АБЛЯЦИЯ КРЕМНИЯ ФЕМТОСЕКУНДНЫМ ЛАЗЕРНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ

А. А. Ионин^а, С. И. Кудряшов^{а}, Л. В. Селезнев^а, Д. В. Синицын^а,
А. Ф. Бункин^б, В. Н. Леднев^б, С. М. Першин^б*

^а *Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

^б *Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 4 июля 2012 г.

Пространственно-временная динамика термического плавления, подповерхностной кавитации, откольной и фрагментационной абляции поверхности кремния под действием одиночных фемтосекундных импульсов излучения ИК-лазера исследована с помощью метода микроскопии оптического отражения с временным разрешением. Данная динамика наблюдалась путем мониторинга пикосекундных и (суб)наносекундных колебаний отражения пробного импульса, которое модулировалось пикосекундными акустическими реверберациями в динамически растущем и одновременно аблируемом поверхностном расплаве с другим акустическим импедансом, а также оптической интерференцией реплик пробного импульса, отраженных от поверхности откольного слоя расплава и его слоя, оставшегося на поверхности мишени. Периоды акустических ревербераций изменяются в ходе роста и абляции поверхностной пленки расплава, позволяя выполнить количественные оценки вклада данных процессов в тепловую динамику поверхности материала. Полученные результаты по тепловой динамике лазерного воздействия подтверждаются данными динамических измерений параметров абляции с помощью бесконтактной ультразвуковой диагностики, а также растровой электронной, атомно-силовой и оптической интерференционной микроскопии областей модификации и абляции, возникающих на поверхности кремния.

DOI: 10.7868/S0044451013030012

1. ВВЕДЕНИЕ

Фемтосекундная лазерная абляция конденсированного вещества в форме пара, расплава или паро-капельной смеси является одним из ключевых процессов нано- и микромасштабной обработки поверхности материалов, обеспечивая ее, по меньшей мере, субмикронную точность [1]. В то же время, несмотря на быстрорастущий интерес к данной перспективной лазерной технологии, фундаментальные микроскопические процессы, лежащие в основе фемтосекундной лазерной абляции, пока не совсем понятны (особенно на нанометровых масштабах) и зачастую на практике неожиданно проявляются в виде ярко выраженной нерегулярной [2] или регулярной [3] нанощероховатости областей абляции.

В предыдущие годы фемтосекундное лазерное плавление и абляция материалов интенсивно исследовались, начиная с пионерских работ [4, 5] в середине 80-х годов, когда был разработан весьма информативный метод исследования этих явлений путем измерения оптического отражения со сверхвысоким (фемтосекундным) временным разрешением. Впоследствии этот метод и его более современная интерферометрическая версия были успешно применены для визуализации микромасштабных процессов сверхбыстрого поверхностного плавления [6–8], теплового и гидродинамического расширения соответственно суб- и закритических флюидов [9, 10], откольной абляции расплава (наблюдаемой в форме динамических колец Ньютона) [10–12], фрагментации расплава путем взрывной дезинтеграции при гидродинамическом расширении его закритического флюида в виде паро-капельной смеси (жаргонное название «фазовый взрыв») [10–13], аморфиза-

*E-mail: sikudr@lebedev.ru

ции поверхности материалов [8], нагретых ультракороткими (фемтосекундными) лазерными импульсами (УКИ). Это позволило получить важную и надежную информацию о пороговых поверхностных плотностях энергии для указанных процессов (например, F_{melt} для плавления, F_{spall} для откольной абляции и F_{frag} для фрагментации), их характерных временных масштабах, скоростях отлета откольного слоя расплава [14, 15], отдельные оценки мгновенной толщины расплава [8, 16], мгновенных оптических постоянных расплава [8] или абляционного факела [14].

Позднее оптическая теневая фотография с временным разрешением использовалась для мониторинга динамики распространения ударных волн и абляционных факелов в воздухе в результате фемтосекундной лазерной абляции [17–20]. В последние годы более информативные структурные методы с временным разрешением, основанные на дифракции или рассеянии ультракоротких (субпикосекундных) импульсов рентгеновского излучения или электронов, были разработаны для более информативной пространственно-временной визуализации динамики плавления [21–24], кипения [25], абляции [26] на атомных масштабах.

Тем не менее многие важные явления взаимодействия УКИ с конденсированным веществом, включая постепенное формирование поверхностного слоя расплава [8], его собственные акустические реверберации и фазовые превращения (плавление, кавитация, кристаллизация или аморфизация [2, 3, 25]), коррелированные коллективные около- и закритические превращения жидкость–пар [25, 27], связанные с инициированной УКИ тепловой динамикой поверхности на промежуточных (10–100 нм) масштабах, характеризуются в настоящее время одиночными, несвязанными фактами и поэтому остаются пока слабоизученными. Упомянутые выше существующие широкие экспериментальные возможности лучевых и оптических исследований тепловых эффектов соответственно на атомных и субмикронных масштабах не позволяют непосредственно исследовать наномасштабные тепловые эффекты, инициированные УКИ на поверхности материалов.

В результате в настоящее время основное представление о микроскопической природе теплового плавления и абляции материалов под действием УКИ получают из результатов молекулярно-динамических (МД) исследований, наглядно иллюстрирующих сверхбыструю атомную динамику и определяющих основные термодинамические параметры плавления [28], откольной абляции [29–31], кавита-

ции [30], фрагментационной абляции [13, 29–31] конденсированного вещества. Однако пространственные и временные особенности эффектов теплопроводности, акустической и электромагнитной эмиссии изучены пока недостаточно. Между тем указанные эффекты являются весьма существенными в условиях высокой (10–100 нм) пространственной локализации области воздействия УКИ — в нагретых наномасштабных гетероструктурах, короткоживущих пленках расплава на поверхности однородных материалов [32, 33], а также для сильнокоррелированных около- и закритических термодинамических состояний конденсированного вещества [27], характерных для фемтосекундной лазерной абляции.

Следовательно, без тщательного разностороннего экспериментального подтверждения физическая картина элементарных микроскопических процессов фемтосекундной лазерной абляции, получаемая исключительно из результатов МД-исследований, в лучшем случае остается справедливой только в качественном отношении. В частности, недавние МД-исследования фемто- и пикосекундного лазерного плавления и абляции кремния [30] представили ряд важных теоретических выводов о микроскопических механизмах плавления и абляции материала, а также практических оценок термодинамических параметров указанных процессов (включая параметры критической точки кремния), которые, ввиду практической значимости данного материала для современной промышленности, требуют надежной экспериментальной проверки, в том числе для возможного в будущем уточнения параметров МД-расчетов для кремния.

В настоящей работе на примере кремния представлены результаты детального комбинированного исследования мезоскопической тепловой динамики плавления и абляции поверхности твердых тел под действием УКИ, которое, на наш взгляд, заполняет существующую нишу в атомных и субмикронных масштабах визуализации этих явлений с помощью сверхкоротких импульсов рентгеновского излучения или быстрых электронов, с одной стороны, и оптического излучения видимого и УФ-диапазонов, с другой. В нашей работе наномасштабная (10–100 нм) динамика расплава кремния впервые детально наблюдается с высоким временным разрешением (около 100 фс) и малым шагом изменения плотности энергии УКИ методом микроскопии оптического отражения с временным разрешением путем регистрации гиперзвуковых волн, возбужденных УКИ в расплаве. Реверберации таких волн в поверхностном расплаве материала, динамически изменяющего толщину

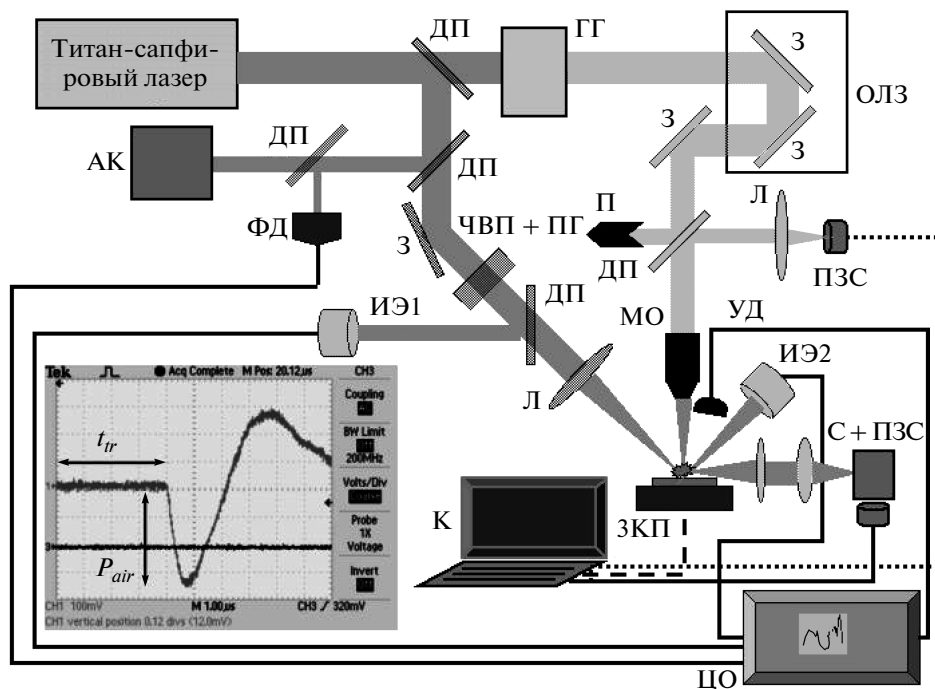


Рис. 1. Экспериментальная установка: ДП — делитель пучка; АК — автокоррелятор; ФД — фотодиод запуска; ЧВП+ПГ — ослабитель энергии из четвертьволновой пластины и призмы Глана; ИЭ1,2 — термопарные измерители энергии; З — зеркало; Л — фокусирующая линза; ГГ — генератор оптических гармоник; ОЛЗ — моторизованная оптическая линия задержки; ПЗС — ПЗС-камера; С+ПЗС — спектрометр с ПЗС-камерой и усилителем яркости; П — поглотитель; ЦО — цифровой осциллограф; УД — ультразвуковой датчик; МО — микрообъектив; ЗКП I — трехкоординатная моторизованная микроподвижка; К — компьютер для управления и сбора информации. Вставка: осциллограмма ультразвукового сигнала с временем задержки прихода на датчик (t_{tr}) и амплитудой давления импульса (P_{air})

ну в результате распространения фронта плавления в материале, предтоковой подповерхностной кавитации, откольной и фрагментационной абляции, позволяют отследить указанные процессы и оценить их количественные вклады. Результаты акустического анализа согласуются с данными измерений основных параметров абляции поверхности кремния, проведенных с помощью других взаимодополняющих динамических и статических методов.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА, МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И ОБРАЗЦЫ

В наших экспериментах мы использовали коммерческие образцы атомно-гладких пластин нелегированного кремния Si(100) толщиной 0.45 мм с естественным оксидным слоем толщиной в несколько нанометров, размещенные на трехкоординатном моторизованном микростолике с компьютерным управлением и сканируемые от лазерного импульса к импульсу для облучения свежих участков мише-

ни (рис. 1). Одноимпульсное лазерное облучение мишени Si осуществлялось одиночными УКИ титан-сапфирового лазера (длина волны 800 нм, длительность импульса на полувысоте $\tau_{las} \approx 90$ фс, энергия импульса в ТЕМ₀₀-режиме до 1.5 мДж, частота следования 10 Гц) с использованием электро-механического затвора. Энергия УКИ плавно изменялась в сторону уменьшения с помощью четвертьволновой пластинки и призмы Глана до уровня около 0.2 мДж во избежание деградации волнового фронта импульса вследствие самофокусировки в воздухе (критическая мощность самофокусировки в воздухе для данной длины волны составляет примерно 3 ГВт [34], т.е. 0.3 мДж для УКИ длительностью 90 фс) и рассеяния/рефракции на воздушной плазме.

УКИ с s-поляризацией фокусировались под углом 45° стеклянной линзой (фокусное расстояние $f = 50$ см) на поверхность мишени Si в эллиптическое пятно ($1/e$ -радиусы 0.10 и 0.05 мм) с цен-

тровкой на оптической оси выходной апертуры микрообъектива канала зондирования (числовая апертура 0.17) или непосредственно напротив центральной части входной активной поверхности пьезоэлектрического ультразвукового датчика MiniWAT-2 (ПВДФ-пленка, полоса менее 30 МГц, чувствительность 10 В/атм) [35] (рис. 1). В первой схеме оптической микроскопии отражения с временным разрешением [5, 36, 37] использовались мощный ИК-УКИ (800 нм) накачки и в десять раз более слабый пробный, задержанный ($\Delta t = 0.1\text{--}3000$ пс) УФ-УКИ (2ω , 400 нм), генерируемый в виде второй гармоники в тонком (1.5 мм) кристалле бората бария (ВВО). Исходный коэффициент отражения пробных УКИ, $R_{2\omega,0}$, для поверхности мишени Si был откалиброван с помощью алюминиевого зеркала (отражение для 400 нм при нормальном падении составляет примерно 0.92), что соответствует величине 0.50 в согласии с расчетным значением 0.48 [38].

Параметры фокусировки УКИ накачки — пиковая плотность энергии F и указанные выше размеры фокального пятна — были установлены путем измерений размеров одноимпульсных абляционных кратеров на поверхности мишени Si при различных значениях энергии УКИ, в то время как глубина X кратеров в зависимости от F (до 1.5 Дж/см²) измерялась с помощью оптического профилометра NewView 700s (Zygo) и атомно-силового микроскопа (АСМ). Поверхностный рельеф в области воздействия УКИ исследовался также с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ).

В схеме бесконтактных ультразвуковых измерений параметров ударной волны, возбуждаемой в воздухе в результате фемтосекундной лазерной абляции, волна давления пробегала расстояние $l_{tr} \approx 5$ мм между поверхностью мишени Si и ультразвуковым датчиком. Электрический сигнал с выхода датчика поступал на низкоомный (50 Ом) вход цифрового осциллографа TDS-2024, запускавшегося электрическим импульсом с засвечиваемого слабым бликом того же УКИ быстрого фотодиода DET-210. Регистрируемые сигналы характеризовались амплитудой P_{air} первого импульса давления и его задержкой t_{tr} (см. вставку на рис. 1). Полученные экспериментальные зависимости $P_{air}(F)$ и $t_{tr}(F)$ затем конвертировались в соответствующие зависимости начального давления P_S и начальной скорости расширения C_S абляционного факела, разгоняющего ударную волну, с использованием описанного ранее численного кода [39].

В схеме спектральных измерений пространственно-временной динамики эмиссии абляционного фа-

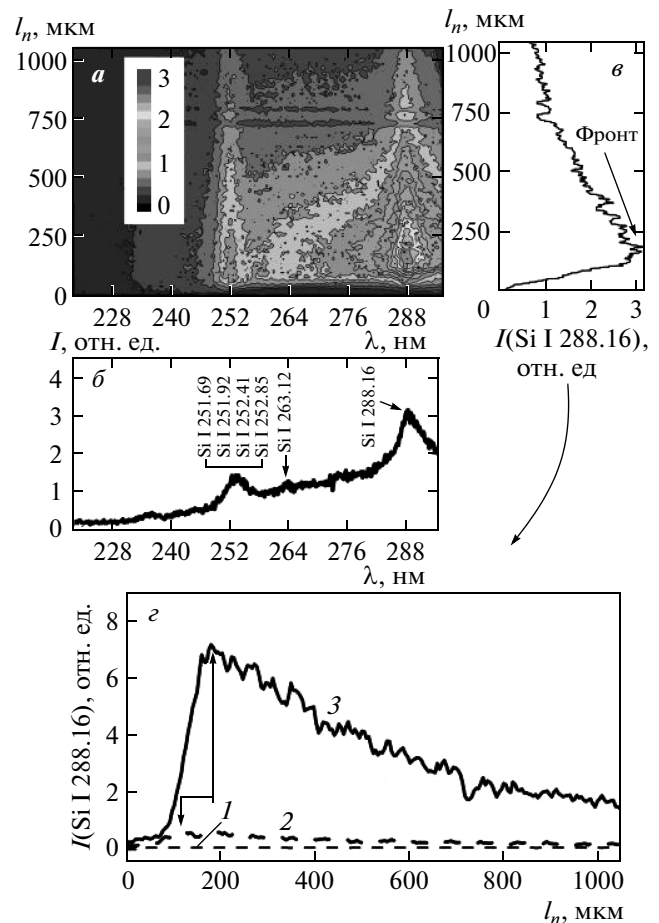


Рис. 2. Принцип определения скорости разлета лазерного факела по эмиссионному спектру для мишени из кремния: *a* — двумерное изображение лазерного факела для задержки 10 нс считывания сигнала оптической эмиссии с экспозицией 5 нс при плотности энергии 6 Дж/см²; *b* и *в* — соответствующие спектр лазерного факела на расстоянии 150 мкм и пространственный профиль интегральной интенсивности линии Si I (288.16 нм); *г* — пространственные профили интегральной интенсивности линии Si I для различных задержек считывания сигнала оптической эмиссии с экспозицией 5 нс при плотности энергии 6 Дж/см²: за 5 нс до лазерного импульса (кривая 1), во время лазерного импульса (2) и через 5 нс после лазерного импульса; стрелки показывают положения максимумов на кривых 2 и 3 (смещение фронта)

кела (см. рис. 1) его боковое изображение с помощью двух кварцевых линз проецировалось с пятикратным увеличением (пространственное разрешение на ПЗС-матрице составляет 4.85 мкм/пиксель) на входную щель спектрографа (Spectro-Physics 74050), обо-

рудованного ПЗС-камерой с усилителем яркости (Andor iStar). Данная схема позволяла регистрировать с временным разрешением до 3 нс двумерные изображения лазерного факела с разверткой по длине волны и координате (расстояние l_n по нормали от поверхности мишени) (рис. 2а-в). Измерения проводили в диапазоне длин волн 195–300 нм (рис. 2б), где расположены наиболее интенсивные атомные линии кремния [40], по которым оценивалась скорость разлета факела от поверхности. Для измерения скорости расширения лазерного факела его изображения регистрировались с экспозицией 5 нс в течение первых 50 нс от момента воздействия УКИ накачки, причем скорость определяли по положению максимума интегральной интенсивности линий на ее пространственном профиле для фиксированной задержки (рис. 2в,г).

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ИНТЕРПРЕТАЦИЯ

Микроснимки оптического отражения, представленные для фотовозбужденных участков поверхности Si на рис. 3а-в, демонстрируют типичные особен-

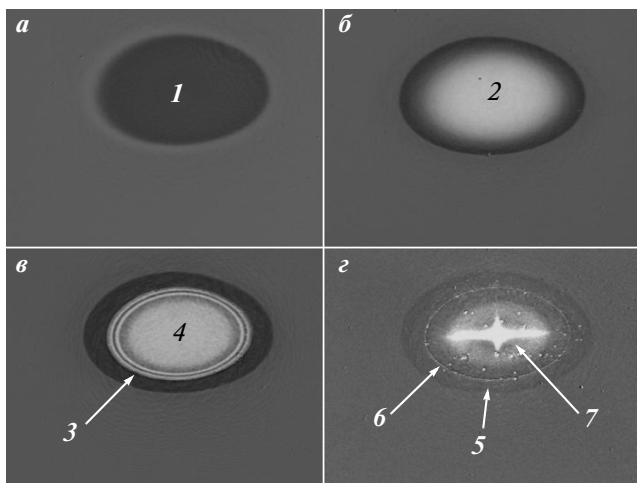


Рис. 3. Снимки в отраженном свете пробного УКИ участка поверхности Si(100), возбужденного при $F = 1.4 \text{ Дж/см}^2$, для задержек $\Delta t = 0.4 \text{ пс}$ (а), 12 пс (б), 300 пс (в) и окончательный вид кратера (г) (размер снимка $500 \text{ мкм} \times 300 \text{ мкм}$). Стрелки с цифрами обозначают характерные области плавления Si (1), его терморасширенного расплава (2), колец Ньютона (3), разлета паро-капельной смеси (4), аморфизации (5), границы кратера (6) и центрального крестообразного пика (7)

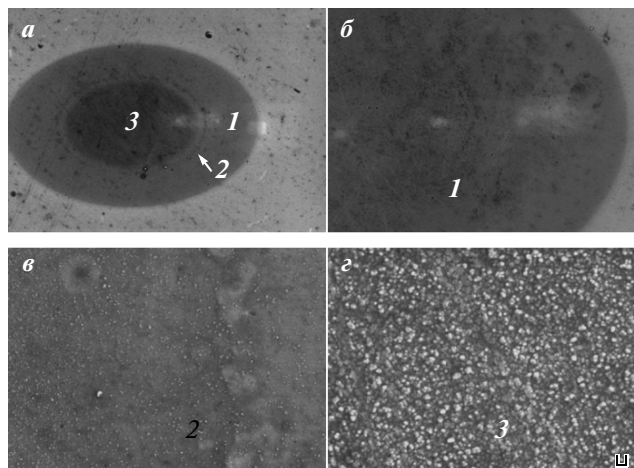


Рис. 4. Снимки СЭМ участка одноимпульсной модификации поверхности Si(100) при $F = 0.8 \text{ Дж/см}^2$ с разным увеличением: а — общий вид с гладкой областью аморфизации (1, б) и нанощероховатой областью абляции (3, г), разделенными разрывным гребнем границы кратера (2, в)

ности отражения: 1) сверхбыстрый (субпикосекундный) рост коэффициента отражения $R_{2\omega}(\Delta t)$ от начального уровня $R_{2\omega,0} \approx 0.5$ до максимального уровня расплава кремния $R_{2\omega,melt} \approx 0.72$ со скоростью, увеличивающейся с ростом F ; 2) быстрое (пикосекундное) монотонное убывание величины $R_{2\omega}$ вследствие теплового расширения поверхностной пленки расплава; 3) последующее длительное (субнаносекундное и более) восстановление отражения пленки расплава вплоть до $R_{2\omega,melt} \approx 0.72$ вследствие его постепенного охлаждения из-за теплопроводности в объеме мишени Si в доабляционном режиме ($F < F_{spall} \approx 0.50 \text{ Дж/см}^2$) или выраженных интерференционных осцилляций $R_{2\omega}$ в абляционном режиме ($F > F_{spall}$), отвечающих кольцам Ньютона [12–14, 36] на рис. 3в и одновременно абляционным кратерам на рис. 3г и рис. 4а,в.

Сверхбыстрое плавление кремния было ранее косвенно установлено с помощью линейной [41] и нелинейной (генерация второй [42] и третьей [43] гармоник — ГВГ и ГТГ — в отражении) оптической диагностики, а также непосредственно с помощью рентгеновской дифракции (РД) с временным разрешением [44]. Примечательно, что повышенное отражение кремния $R_{2\omega,melt} \approx 0.72$ (рис. 5) в точности отвечает величине отражения его оптически-толстого слоя равновесного теплового расплава [41]. По данным структурно-чувствительных измерений с использованием ГВГ, ГТГ и РД такое пи-

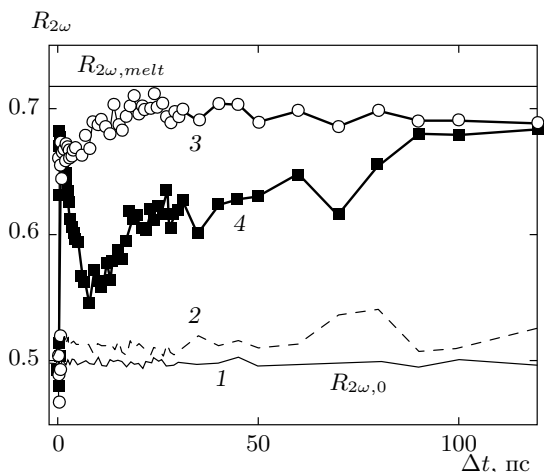


Рис. 5. Кривые $R_{2\omega}(\Delta t)$ для различных значений $F < F_{spall} \approx 0.50$ Дж/см²: $F = 0.001$ (1), 0.22 (2), 0.29 (3), 0.41 (4) Дж/см². Метки $R_{2\omega,0}$ и $R_{2\omega,melt}$ показывают соответственно начальное отражение поверхности Si(100) и максимальное отражение (≈ 0.72) лазерно-индуцированного расплава Si

косекундное плавление кремния было обнаружено при $F_{melt} \approx 0.15$ Дж/см² для УКИ накачки с длиной волны 625 нм [45], и $F_{melt} \approx 0.1$ Дж/см² для УКИ накачки с длиной волны 800 нм [43, 44].

В настоящей работе пикосекундное плавление материала, согласно скачку отражения на рис. 3а,б и рис. 5 и появлению области аморфизации на рис. 3г и рис. 4а,г, возникало около 0.23 Дж/см² (см. для сравнения несколько более высокий порог аморфизации кремния около 0.27 Дж/см² для падающих по нормали и поэтому более сильно отражающихся УКИ накачки с той же длиной волны [8]). Такая значительная (130–170%) разница в измеренных порогах плавления кремния для структурно-чувствительных (ГВГ, ГТГ, РД) методов и использованного в настоящей работе метода измерения линейного отражения (наряду с довольно слабым (60–80%) изменением мгновенной поглощающей способности материала для разных (s, p) поляризаций и углов падения менее 45° [37]), может быть также обусловлена не только степенью допирования кремния и состоянием его поверхности (шероховатость и толщина оксидной пленки). На наш взгляд, основной причиной этого расхождения является 150-процентная разница энтальпий твердого материала s -Si при температуре плавления 1415 °С (35 кДж/моль [40]; начало нуклеации расплава или частичное плавление) и жидкого материала l -Si при

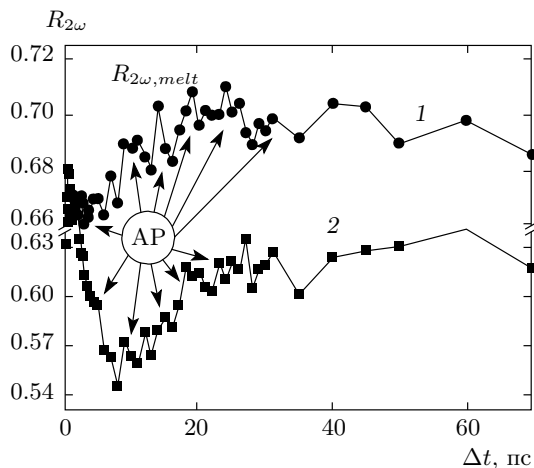


Рис. 6. Акустические реверберации (АР) на кривых $R_{2\omega}(\Delta t)$ для значений $F_{melt} < F < F_{spall}$: $F = 0.29$ (1), 0.41 (2) Дж/см²

той же температуре (85 кДж/моль, включая теплоту плавления 50 кДж/моль [40]; полное плавление), каждая из которых может быть произвольно связана с началом плавления. В заключение следует отметить, что при высоких плотностях энергии $F > 0.7$ Дж/см² кольца Ньютона не наблюдались в центральной зоне области воздействия (см. рис. 3в), что предполагает возможность фрагментационной абляции закритического флюида вещества путем его гидродинамического расширения и разлета в виде паро-капельной смеси [10, 29–31]. Указанные характерные переходные процессы и состояния кремния рассмотрены ниже более детально.

3.1. Плавление

Для изучения динамики плавления кремния и ее основных параметров мы исследовали пикосекундные осцилляции отражения $R_{2\omega}$ с постепенно нарастающими периодами $T_{1,rev}$, наблюдаемые в диапазоне $F_{melt} < F < F_{spall}$ для $\Delta t > 4$ пс (рис. 6), когда как раз имеет место акустическая релаксация нагретой пленки расплава. Ранее мощные акустические волны уже наблюдались на тех же временных масштабах в результате сверхбыстрого плавления полупроводников, возбужденных УКИ, с помощью метода РД [32, 33], однако акустические реверберации в слое расплава до сих пор не отслеживались. В нашем случае пикосекундные осцилляции отражения пробного УКИ также можно связать с образованием пленки расплава кремния, в частности, с акустическими реверберациями в этой пленке, моду-

лирующими ее отражение посредством пьезоэффекта [46] и инициированными в расплаве, по-видимому, быстрым и значительным увеличением плотности материала (на 9.6% [47]) в результате плавления. Эти реверберации поддерживаются исключительно рассогласованием акустических импедансов твердого *s*-Si ($\rho_s, C_{l,s}(100) \approx 2.0 \cdot 10^7$ кг/м²с для плотности $\rho_s = 2.33 \cdot 10^3$ кг/м³ и продольной скорости звука в направлении [100] $C_{l,s}(100) = 8.4$ км/с [40]) и его расплава ($\rho_m C_{l,m} \approx 1.0 \cdot 10^7$ кг/м²с для плотности $\rho_m = 2.55 \cdot 10^3$ кг/м³ [47] и продольной скорости звука $C_{l,m} \approx 3.9$ км/с, существенно зависящей от температуры [48]).

Можно предположить, что увеличивающиеся периоды ревербераций $T_{1,rev}$ (рис. 6, 7), наблюдаемые, начиная с порога сверхбыстрого плавления $F_{melt} \approx 0.23$ Дж/см², связаны с толщиной Y_1 пленки расплава, постепенно увеличивающейся с течением времени Δt , начиная от поверхности, и затем насыщающейся на уровне $Y_{1,max}$. В частности, для жесткой границы твердое тело–расплав с $\rho_m C_{l,m} < \rho_s C_{l,s}(100)$ [49]) осцилляции отражения должны проявляться на кривых $R_{2\omega}(\Delta t)$ в той же фазе после двух круговых обходов звуком пленки расплава, встречающим на этом пути два раза свободную границу расплав–воздух, где каждый раз происходит изменение фазы на π . Соответственно, можно записать

$$Y_1(\Delta t) = \frac{1}{4} C_{l,m} T_{1,rev}(\Delta t)$$

и получить абсолютную калибровку мгновенной толщины расплава (например, максимальная толщина $Y_{1,max}(F \leq F_{spall}) \approx 50$ нм на рис. 8 количественно согласуется с предшествующими оценками 50–60 нм для доабляционного режима [8]).

Кривые $Y_1(\Delta t)$ для различных значений $F > F_{melt}$ на рис. 7 имеют почти постоянные угловые наклоны для $Y_1(\Delta t) \propto \Delta t$, что указывает, по-видимому, на плавление материала в результате баллистического пробега фронта плавления от поверхности в прогретый твердый кремний. Согласно данным рис. 7, характерные скорости плавления $V_{melt} \approx 0.4$ км/с находятся в полуколичественном согласии с отдельными известными значениями максимальной скорости фронта гетерогенного плавления для других полупроводников (0.35–0.85 км/с [32, 50]). Действительно, модельная аппроксимация зависимости $Y_{1,max}(F)$ на рис. 8 в виде

$$Y_{1,max}(F) = \delta_{dep} \ln(F/F_{melt})$$

для однофотонного поглощения дает весьма большую эффективную глубину вложения энергии

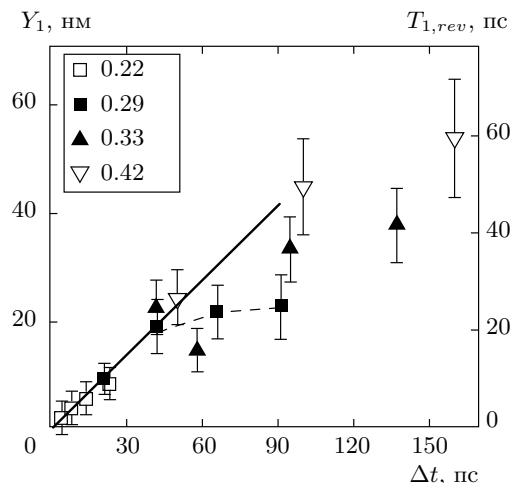


Рис. 7. Временная динамика периода ревербераций $T_{1,rev}$ и соответствующая толщина расплава Y_1 для различных значений $F < F_{spall} \approx 0.50$ Дж/см² (приведены в рамке). Прямая линия представляет начальный этап движения фронта плавления со скоростью около 0.4 км/с

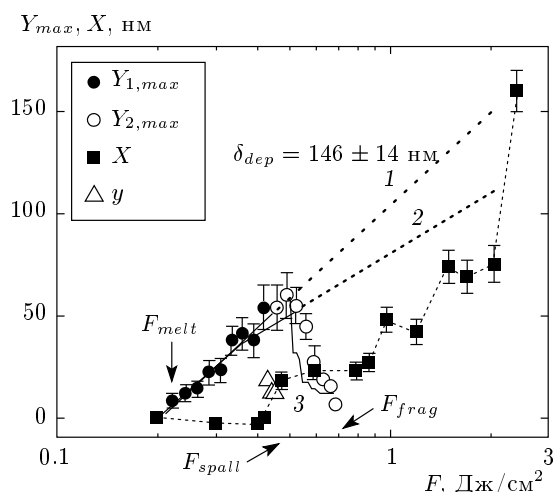


Рис. 8. Зависимости от F максимальной толщины расплава $Y_{1(2),max}$, глубины кратера X и позиции разрыва расплава y . Стрелки с метками указывают пороги плавления F_{melt} , откольной абляции F_{spall} и фрагментации F_{frag} . Кривые 1 и 2 представляют аппроксимации $Y_{calc,max}$ зависимости $Y_{1,max}(F)$ в предположении соответственно однофотонного ($\delta_{dep} = 146 \pm 14$ нм) и двухфотонного поглощения. Кривая 3 представляет аппроксимацию зависимости $Y_{2,max}(F)$ произведением $V_{melt} T_{rup}(F)$

УКИ, $\delta_{dep} = 146 \pm 14$ нм (аналогичные значения 140, 145 и 135 нм глубины вложения энергии измерены для Si в работах [8, 51, 52] на основе данных о глубине абляции материала) при близкой величине $F_{melt} = 0.23 \pm 0.05$ Дж/см², что отвечает глубокому, довольно однородному прогреву мишени на глубинах около $Y_{1,max}$.

Вместе с тем в литературе встречаются также предположения о двухфотонном характере поглощения материала для УКИ видимого диапазона, соответствующем выражению вида

$$Y_{1,max}(F) = \frac{\tau_{las}}{\beta F_{melt}} - \frac{\tau_{las}}{\beta F}.$$

Оно также дает хорошую аппроксимацию зависимости $Y_{1,max}(F)$ для нелинейного коэффициента поглощения $\beta = 55 \pm 6$ см/ГВт (см. $\beta = 40 \pm 14$ см/ГВт и $\beta = 50 \pm 10$ см/ГВт для Si при возбуждении мощными УКИ накачки с длиной волны 625 нм [53, 54]) и для близкой величины порога плавления $F_{melt} = 0.21 \pm 0.04$ Дж/см².

В обоих случаях имеют место глубокое вложение энергии УКИ (т.е. $\delta_{dep}, \tau_{las}/\beta F_{melt} \sim 10^2$ нм $\gg \gg Y_{1,max}$) и прогрев материала, согласующиеся с отмеченным выше кинетически лимитированным (не ограниченным теплопроводностью) характером его плавления. Более того, вблизи порога F_{melt} объемная плотность вложенной энергии (приблизительно $(1 - R_{s,\omega})F_{melt}/\delta_{dep}$ или $(1 - R_{s,\omega})^2\beta F_{melt}^2/\tau_{las}$) для величины отражения $R_{s,\omega} \approx 0.35$ [37] s-поляризованного ИК УКИ накачки, падающего под углом 45°, соответствует довольно близким значениям $1.0 \cdot 10^4$ Дж/см³ или $1.3 \cdot 10^4$ Дж/см³ ($1.1 \cdot 10^5$ Дж/моль или $1.5 \cdot 10^5$ Дж/моль), которые примерно на 30–80 % выше энтальпии расплава кремния в точке плавления (85 кДж/моль [40]). Указанные значения объемной плотности энергии для минимальной (непрямой) зонной щели кремния около 1 эВ [46] отвечают промежуточным плотностям электрон-дырочной плазмы порядка 10^{22} см⁻³ [54] и, таким образом, значительной перенормировке зонного спектра материала [37], допускающей возможность как двух-, так и однофотонного поглощения [53, 54].

3.2. Кавитация

Начиная с величины $F \approx 0.43$ Дж/см² (чуть ниже порога откольной абляции $F_{spall} \approx 0.50$ Дж/см²), выраженный узкий минимум с фронтами около 150 пс появляется на плато отражения расплава при $\Delta t \approx 0.5$ нс (рис. 9) в ходе охлаждения расплава

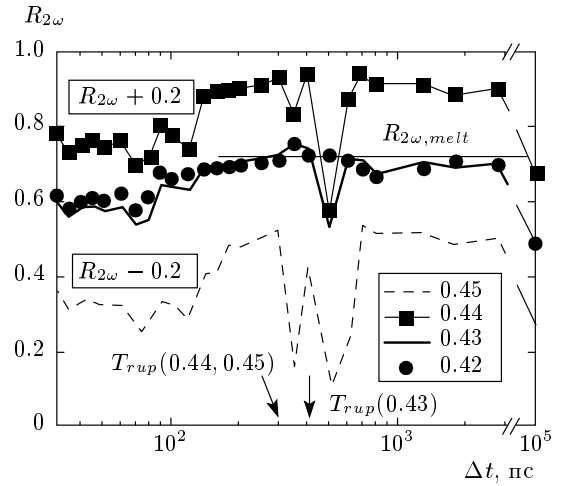


Рис. 9. Кривые $R_{2\omega}(\Delta t)$ (сдвинуты вверх и вниз для удобства представления) для различных значений $F = 0.42-0.45$ Дж/см² $< F_{spall}$, приведенных в рамке. Стрелки показывают соответствующие моменты $T_{rup}(F)$ разрыва пленки расплава

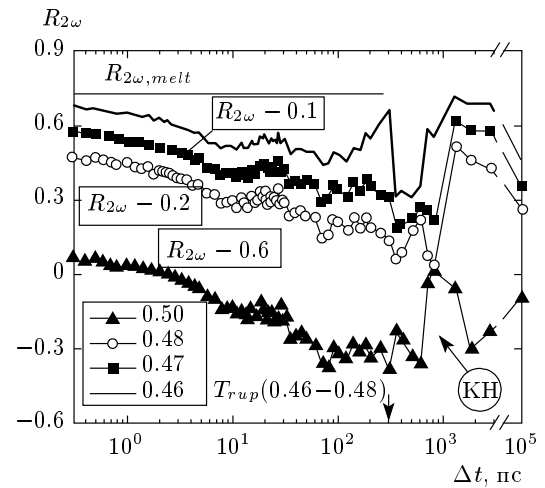


Рис. 10. Кривые $R_{2\omega}(\Delta t)$ (сдвинуты вниз для удобства представления) для различных значений $F = 0.46-0.50$ Дж/см² $\leq F_{spall}$, приведенных в рамке. Стрелки показывают соответствующие моменты $T_{rup}(F)$ разрыва пленки расплава, а также абляционную интерференционную модуляцию (кольца Ньютона, КН) при $F = 0.50$ Дж/см² $\geq F_{spall}$

вследствие теплопроводности в объем, но уже после завершения акустической релаксации ($\Delta t \leq 30$ пс). Указанный минимум полностью отсутствует на кривых $R_{2\omega}(\Delta t)$ при $F = 0.41$ и $F = 0.42$ Дж/см², а также ниже этих значений, тогда как при более высоких значениях $F = 0.43, 0.44, 0.45$ Дж/см² он обязательно

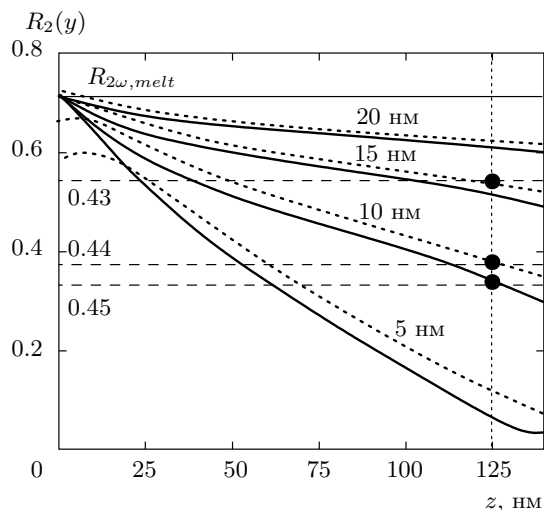


Рис. 11. Расчетные зависимости коэффициента отражения $R_2(y)$ для поверхности кремния от ширины z парового слоя для разных значений толщины откольного слоя $y = 0-20$ нм: сплошные и пунктирные кривые — соответственно для оптически толстого расплава и твердого кремния на поверхности под откольным слоем (другие детали см. в тексте). Горизонтальные штриховые линии представляют коэффициент отражения в провалах при $F = 0.43-0.45$ Дж/см² на рис. 9

но проявляется в виде последовательности минимумов с фронтами 50–100 пс в моменты $\Delta t \approx 0.35$ нс и $\Delta t = 0.5$ нс (рис. 9). Чуть ниже порога откольной абляции (при $F = 0.46$ или $F = 0.47$ Дж/см²) последовательность минимумов сливается в один широкий и глубокий провал с фронтами около 100 пс, начинающийся при $\Delta t \approx 0.18$ или $\Delta t = 0.3$ нс и продолжающийся до 1.3 нс. Непосредственно вблизи порога абляции (при $F = 0.48$ и $F = 0.49$ Дж/см²) провал наблюдается уже в области минимума отражения терморасширенного расплава, а внутри него появляется пичок с амплитудой, практически точно отвечающей уровню отражения вне провала (рис. 10). Как провал, так и пичок внутри него (рис. 11) имеют интерференционную природу обратимого разрыва пленки расплава путем формирования плоского пузыря с условиями интерференции для максимумов и минимумов первого порядка вида

$$n^* z = 0.5 \lambda_{2\omega}, \quad n^* z = 0.25 \lambda_{2\omega},$$

где $\lambda_{2\omega} = 400$ нм — длина волны пробного УКИ, n^* — предполагаемый показатель преломления паров кремния в подповерхностной полости-пузыре (равный примерно 1 [55]), а z — толщина парово-

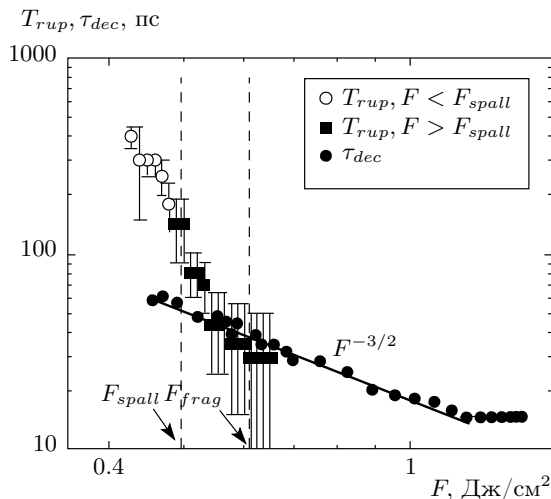


Рис. 12. Зависимости задержки T_{rup} разрыва пленки расплава (при $F < F_{spall}$ и $F > F_{spall}$) и характерного времени τ_{dec} разгрузки закритического флюида от F . Наклонная прямая представляет аппроксимацию последней зависимости в логарифмических координатах с угловым наклоном $3/2$. Вертикальные штриховые линии показывают положение порогов откольной (F_{spall}) и фрагментационной (F_{frag}) абляции

го слоя. Развитие пузыря, начиная с $\Delta t \approx 0.18$ нс (момента разрыва T_{rup}), для предабляционных условий ($F = 0.48-0.49$ Дж/см²) происходит с достижением минимума интерференции ($z \approx 100$ нм) при $\Delta t \approx 0.35$ нс и максимума интерференции ($z \approx 200$ нм) при $\Delta t \approx 0.6$ нс, что соответствует скоростям расширения 0.4–0.5 км/с плоского пузыря. Выше порога абляции ($F \geq F_{spall}$) эта особенность проявляется непосредственно перед откольным вылетом в виде резких, неглубоких провалов в области пикосекундных минимумов кривых $R_{2\omega}(\Delta t)$, связанных с тепловым расширением и акустической релаксацией расплава Si (см. метки T_{rup} на рис. 10).

Таким образом, пороговый, задержанный практически до конца акустической релаксации, осциллирующий и обратимый (для $F < F_{spall}$) характер наблюдаемых резких провалов отражения расплава можно связать с подповерхностной кавитацией в его терморасширенной пленке, создающей разрыв последней в форме плоского пузыря в момент $\Delta t = T_{rup}(F < F_{spall})$ (рис. 12). Кавитационная природа разрыва подтверждается наблюдением с помощью АСМ и СЭМ множественных нанопичков и нанократеров непосредственно вдоль границы откольной абляции на плоской поверхности кремния (см.

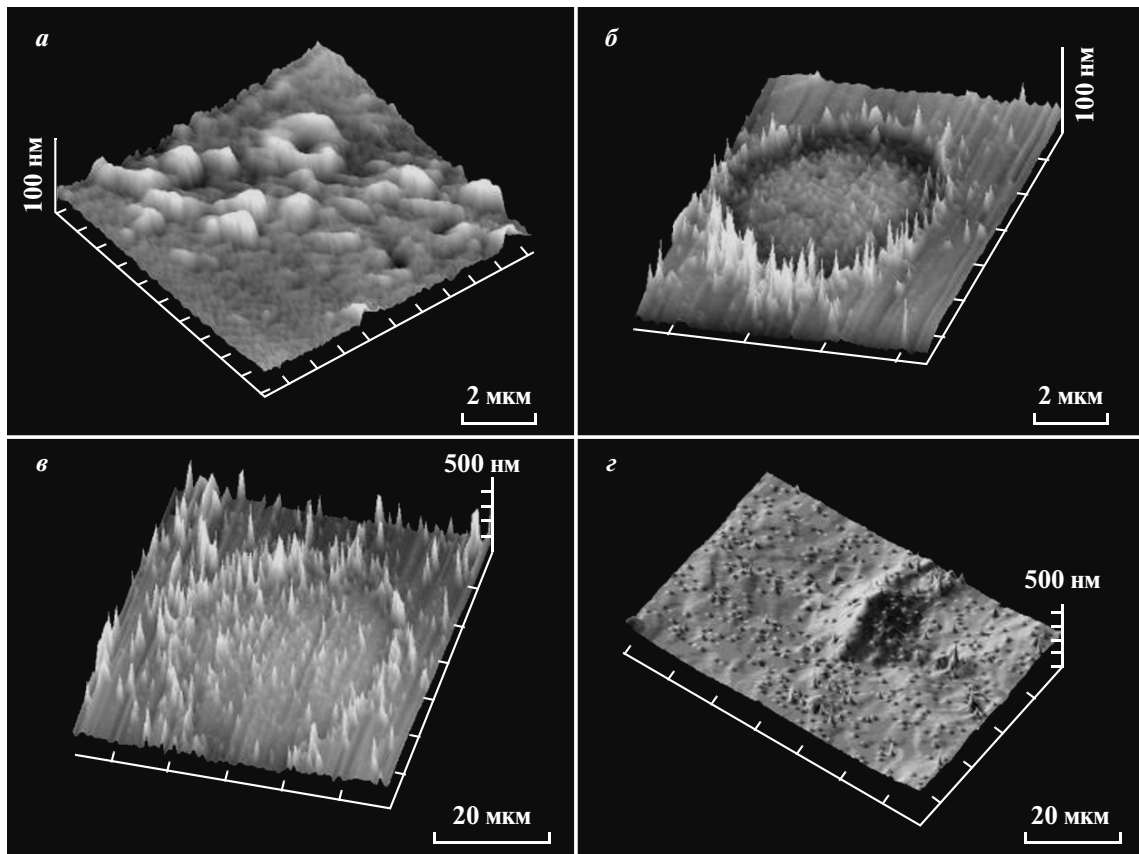


Рис. 13. АСМ-снимки одноимпульсных кратеров на поверхности Si(100): *a* — граница кратера при $F = 0.6$ Дж/см², приведенного на рис. *б*; *в* и *г* — кратеры соответственно при $F = 0.8$ Дж/см² и $F = 1.3$ Дж/см²

рис. 4*а,в* и рис. 13*а*), предсказанных ранее теоретически [3]. Такой обратимый доабляционный разрыв расплава ранее отмечался в МД-расчетах [2, 31, 56], однако экспериментально впервые наблюдался только в настоящей работе в узком кольце (ширина около 3 мкм) благодаря высокому пространственному разрешению схемы оптической микроскопии отражения (0.4 мкм).

Резкая и сильная модуляция отражения вследствие подповерхностного разрыва расплава с образованием пузыря в момент $\Delta t \approx T_{rup}$ связана с образованием пары новых, хорошо отражающих поверхностей раздела, представляющих лицевую/тыльную сторону пленки пузыря толщиной y и лицевую сторону поверхности мишени, разделенных подповерхностной паровой полостью. В зависимости от хода процесса откольной абляции поверхность мишени может быть тонкой или оптически толстой пленкой расплава или даже нагретой (возможно,

частично разупорядоченной) твердой фазой кремния. Коэффициент отражения для такой многослойной системы в простейших случаях последовательных слоев «воздух/тонкая пленка расплава/паровой слой/толстая пленка расплава или холодная твердая фаза» описывается как функция толщины y пленки пузыря и ширины z парового слоя в виде [57]

$$R_2(y, z) = \frac{t_{13}^2(y, z) + u_{13}^2(y, z)}{p_{13}^2(y, z) + q_{13}^2(y, z)}, \quad (1)$$

где входящие функции t_{13} , u_{13} , p_{13} , q_{13} переменных y и z рассчитываются с использованием громоздкого набора промежуточных выражений [57] (здесь не приводятся) и оптических постоянных расплава кремния $n_l - ik_l = 1.8 - i \cdot 4.2$ [41] или его твердой фазы $n_s - ik_s = 5.6 - i \cdot 0.3$ [38] на длине волны 400 нм. Выбор оптических постоянных холодной твердой фазы кремния в последнем случае оправдан

наблюдаемым на рис. 5 незначительным (менее 5%) изменением отражения $R_{2\omega}(\Delta t)$ для $F \leq F_{melt}$.

Значения R_2 для различных значений y в диапазоне 0–20 нм (см. рис. 11) рассчитывались в зависимости от величины z в диапазоне $z = 0-130$ нм, определяемом положением первого интерференционного минимума отражения при откольном отлете пленки. Эти модельные кривые показывают, что провалы отражения до значений 0.54 ($F \approx 0.43$ Дж/см²), 0.38 ($F \approx 0.44$ Дж/см²), 0.32 ($F \approx 0.45$ Дж/см²) на рис. 9, 10 с максимумом модуляции до 0.4 можно сопоставить, скорее всего, с толщиной пленки пузыря $y \approx 10$ нм при изменении z в диапазоне 50–120 нм (рис. 11), практически независимо от фазового состояния (расплав, твердое вещество) остающейся поверхности раздела. Полученная оценка величины y неплохо согласуется с глубиной $X \approx 18$ нм откольного кратера на поверхности кремния при $F \geq F_{spall}$ (см. рис. 8, см. также разд. 3.3).

3.3. Откольная абляция

Для значений плотности энергии $F > F_{spall}$ пикосекундный спад величины $R_{2\omega}$, связанный с тепловым расширением и акустической релаксацией более толстой пленки расплава, длится дольше, чем для $F < F_{spall}$. Поэтому он плавно, но с большей задержкой переходит в почти плоский, широкий минимум отражения (рис. 14). Указанный минимум содержит отчетливый узкий провал в результате разрыва расплава в момент T_{rup} , задержка которого медленно уменьшается с ростом $F \geq F_{spall}$ (см. рис. 12). После разрыва расплава на субнаносекундных временах величина $R_{2\omega}$ начинает восстанавливаться, стремясь к начальному уровню $R_{2\omega,0}$, но уже с образованием кратера на данном участке одноимпульсного воздействия УКИ (см. рис. 3г, 4в, 13б).

Далее, в ходе восстановления пробного отражения отмечаются выраженные регулярные субнаносекундные осцилляции с амплитудой $\Delta R_{2\omega}$, зависящей от F (рис. 15), которые представляют временную динамику интерференционных экстремумов (колец Ньютона на рис. 3в). Согласно уравнению (1), интерференционная картина появляется в результате пространственно-временного сложения реплик пробного УКИ, отраженного от лицевых поверхностей отколовшейся и остающейся на поверхности пленок расплава кремния [12, 36], которые разделены прозрачным паровым слоем (предполагаемый показатель преломления $n^* \approx 1$ [55]). Моменты времени, в которые на кривых $R_{2\omega}(\Delta t)$ появляются мак-

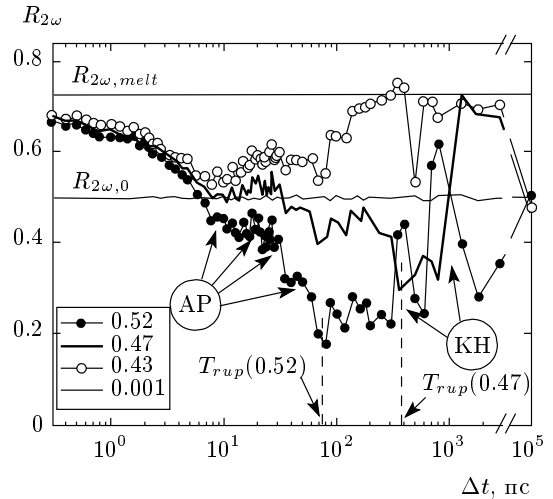


Рис. 14. Кривые $R_{2\omega}(\Delta t)$ для различных значений $F < F_{spall}$ и $F \geq F_{spall}$ ($F_{spall} \approx 0.5$ Дж/см²), приведенных в рамке. Метки AP, KH и T_{rup} соответственно отмечают модуляцию коэффициента отражения вследствие акустических ревербераций в расплаве и оптической интерференции (кольца Ньютона), а также задержки кавитационного разрыва расплава для различных значений F

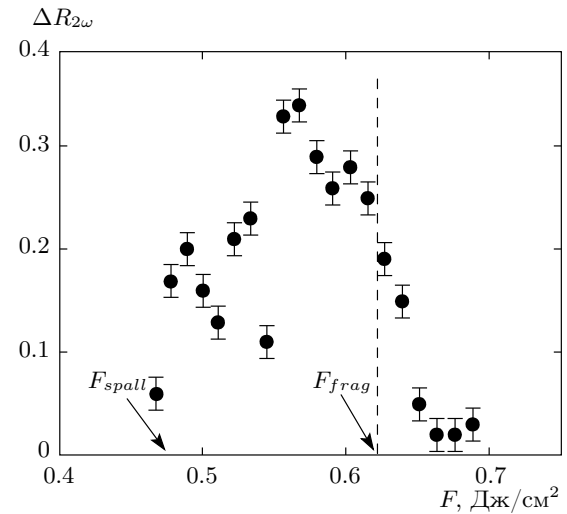


Рис. 15. Зависимость интерференционного контраста $\Delta R_{2\omega}$ от F в области порогов откольной (F_{spall}) и фрагментационной (F_{frag}) абляции

симумы и минимумы, можно пересчитать в расстоянии отлета $n^* L_{spall}$, используя условия интерференции m -го порядка для длины волны $\lambda_{2\omega} = 400$ нм пробного УКИ в виде соответственно

$$n^* L_{spall} = 0.5m\lambda_{2\omega}, \quad n^* L_{spall} = 0.25[2m + 1]\lambda_{2\omega}.$$

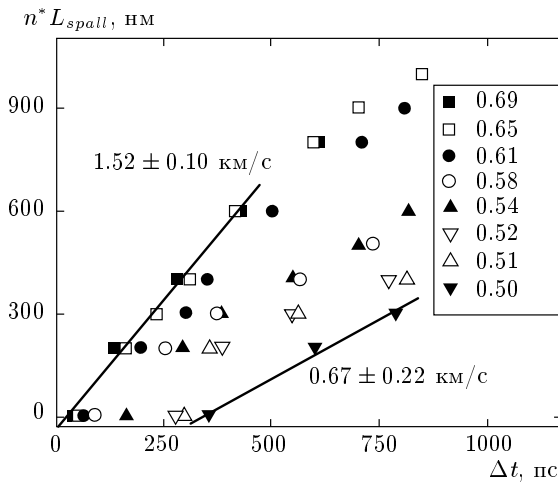


Рис. 16. Расстояния отлета $n^*L_{spall}(\Delta t)$ откольного слоя для разных значений $F \geq F_{spall}$, приведенных в рамке. Аппроксимационные прямые и угловые наклоны приведены для крайних значений $F \approx 0.50$ и $F = 0.69$ Дж/см²

Соответствующие временные зависимости расстояния отлета $n^*L_{spall}(\Delta t)$ (см. рис. 16), экстраполированные к временной оси, показывают для различных значений $F > F_{spall}$ задержки начала отлета, хорошо согласующиеся с задержками T_{rup} разрыва пленки расплава (см. рис. 12), и монотонно возрастающие угловые наклоны (скорости отлета) $V_{spall} \approx 0.7-1.5$ км/с (см. рис. 17), которые также качественно согласуются с результатами предшествующих измерений, выполненных, правда, для других материалов [14, 15].

Для выяснения динамики пленки расплава, предшествующей ее разрыву и отлету, вновь были изучены пикосекундные акустические реверберации в поверхностной пленке расплава в диапазоне значений плотности энергии 0.5–0.7 Дж/см². Данные реверберации с малыми периодами $T_{2,rev} \ll T_{1,rev}$ (см. рис. 7, 18) отражают динамику роста толщины Y_2 пленки расплава в зависимости от времени Δt — с насыщением для $F \geq F_{spall}$ и без насыщения при $F > F_{spall}$. В первом случае максимальные значения $Y_{2,max}$, зависящие от F , определяются положением в образце поверхности изотермы для пикосекундного плавления материала, а во втором — глубиной поверхности разрыва пленки расплава.

Аналогично доабляционному режиму при $F \leq F_{spall}$, выражение $Y_2(\Delta t) = C_{l,m}T_{2,rev}(\Delta t)/4$ для жесткой границы расплав–твердая фаза с $\rho_m C_{l,m} < \rho_s C_{l,s}(100)$ отвечает зависимости $Y_{2,max}(F)$ (см. рис. 8), согласующейся с зависимостью $Y_{1,max}(F)$

при малых значениях $F \approx F_{spall}$ и быстро убывающей при $F > F_{spall}$. Последняя тенденция связана, по-видимому, с быстрым уменьшением задержки разрыва T_{rup} для $F > F_{spall}$ (см. рис. 12), ограничивающей максимальную толщину $Y_{2,max}$ расплава на момент разрыва величиной произведения $V_{melt}T_{rup}$ (соответствующая подгоночная кривая дана на рис. 8 для типичной скорости движения фронта плавления $V_{melt} \approx 0.4$ км/с, приведенной на рис. 7, 18). Действительно, непосредственное сравнение зависимостей $X(F)$ и $Y_{2,max}(F)$ на рис. 8 в области $F \geq F_{spall}$ показывает, что максимальная для данного режима толщина $Y_{2,max}$ пленки расплава (в области $F \geq 0.55$ Дж/см²) практически равна глубине абляции (в данном случае — откольной) X .

Примечательно также неплохое соответствие между расчетными зависимостями максимальной толщины $Y_{calc,max}(F)$ расплава, полученными в приближениях одно- или двухфотонного поглощения (соответственно кривые ОФП и ДФП на рис. 8) как экстраполяции кривой $Y_{1,max}(F)$, и участком зависимости $X(F)$ при больших значениях F (при которых большие глубины абляции $X \sim 10^2$ нм согласуются с предшествующими измерениями [51, 52]). Это позволяет предположить, что после разрыва и отлета верхней части пленки расплава фронт плавления продолжает распространяться в глубь перегретого твердого кремния вплоть до позиции изотермы пикосекундного плавления материала внутри образца.

4. ФРАГМЕНТАЦИЯ

В области больших значений $F > 0.65-0.7$ Дж/см² пикосекундный спад кривых $R_{2\omega}(\Delta t)$ на рис. 19 происходит гладко с характерными временами распада τ_{dec} (см. рис. 12), монотонно уменьшающимися в диапазоне $F = 0.45-1.40$ Дж/см² от 60 до 15 пс (но всегда $\tau_{dec} \leq T_{rup}$), согласно размерному соотношению вида $\tau_{dec}(F) \propto F^{-3/2}$ (см. рис. 12), до глубокого минимума отражения $R_{2\omega,mix} \approx 0.09$. С учетом предшествующего анализа отражения материала столь слабое отражение представляется характерным для сильнорассеивающей, слабопоглощающей фазы вещества [14] на поверхности сильноотражающего расплава (см. центральную область слабого отражения с микрогетерогенной структурой в области воздействия УКИ накачки на рис. 3в), а не оптически толстой, слабопоглощающей однородной фазы.

Более того, последующая динамика $R_{2\omega}(\Delta t)$

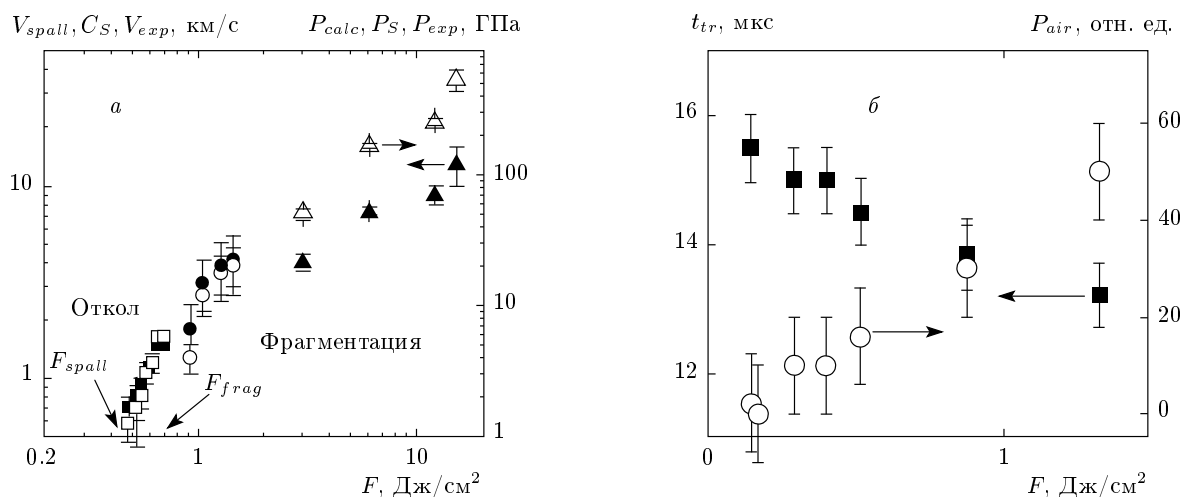


Рис. 17. а) Зависимости от F скорости отлета (V_{spall} , темные квадраты), начальной скорости разлета закритического флюида (C_S , темные кружки; V_{exp} , темные треугольники), а также соответствующих значений откольного давления (P_{spall} , светлые квадраты) и давления флюида (P_S , светлые кружки; P_{exp} , светлые треугольники) в области порогов F_{spall} и F_{frag} . б) Зависимости времени t_{tr} пробега ударной волны в воздухе и ее амплитуды P_{air} от F

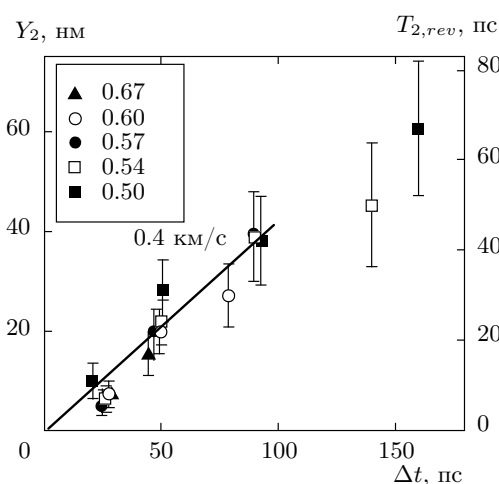


Рис. 18. Временная динамика периода ревербераций $T_{2,rev}$ и соответствующая толщина расплава Y_2 для различных значений $F > F_{spall}$ (приведены в рамке). Прямая линия представляет начальный этап движения фронта плавления со скоростью около 0.4 км/с

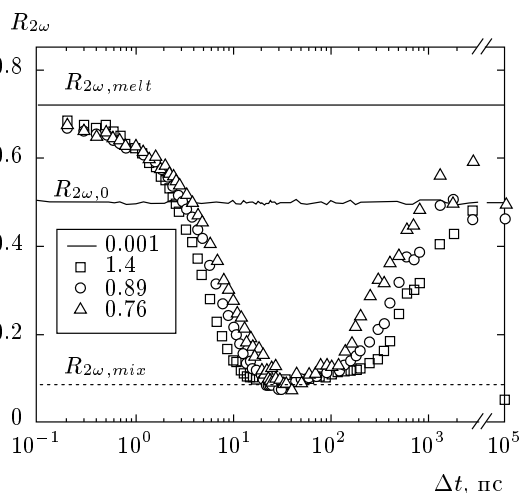


Рис. 19. Кривые $R_{2\omega}(\Delta t)$ для различных значений $F \geq F_{frag}$ ($F_{frag} \approx 0.65-0.70$ Дж/см²), приведенных в рамке. Метка $R_{2\omega,mix}$ показывает минимальное отражение закритического флюида или последующей паро-капельной смеси, сплошные кривые на участке убывания зависимостей $R_{2\omega}(\Delta t)$ представляют их аппроксимацию вида $R_{2\omega} \propto \exp(-\Delta t/\tau_{dec})$

выражается в монотонном (суб)наносекундном восстановлении отражения без интерференционных особенностей. Амплитуда $\Delta R_{2\omega}$ субнаносекундных интерференционных осцилляций отражения быстро уменьшается для $F > 0.63$ Дж/см² (см. рис. 15) вплоть до исчезновения в шумах при $F > 0.65$ Дж/см² (см. рис. 3в). Данный эффект

можно отнести к экранированию откольного слоя паро-капельными продуктами ряда фрагментационных процессов — докритического гомогенного вскипания, околоскритического спиноподобного распада или закритического прямого превращения жидкости в пар [29–31]. С другой стороны, резкое

уменьшение контраста колец Ньютона ранее объяснялось размытием резкого фронта откольного слоя при относительно высокой (более 0.1 км/с) продольной скорости звука в такой двухфазной околокритической паро-капельной смеси [58].

Интересно, что при $F > 0.65$ Дж/см² величина $Y_{2,max}$, доступная для откольной абляции в соответствующий момент T_{rup} , становится существенно меньше окончательной глубины кратера X (см. рис. 8). Фактически, появление разности между X и $Y_{2,max}$ указывает на более быстрый (по сравнению с откольной абляцией) конкурирующий процесс удаления вещества. В данном контексте слияние кривых $T_{rup}(F)$ и $\tau_{dec}(F)$ при $F > 0.6$ Дж/см² может также указывать на смену механизма абляции (от откольной к фрагментационной) выше порога $F_{frag} \approx 0.65-0.70$ Дж/см². Сильное уточнение откольного слоя при $F > F_{frag}$ вместе с одновременным экранирующим эффектом паро-капельной смеси и возможным резким увеличением в ней скорости звука [58] могут привести как к драматическому снижению оптического контраста интерференционных особенностей при отлете откольного слоя, так и к его физическому исчезновению при более высоких значениях F .

Данный режим абляции характеризуется также высокими начальными скоростями $C_S \approx 1.7-4.1$ км/с и давлениями $P_S \approx 4-20$ ГПа (см. рис. 17) расширения абляционного факела в форме точечного взрыва, которые в нижнем пределе $F \approx F_{frag} \approx 0.7$ Дж/см² хорошо согласуются с максимальными значениями аналогичных параметров для откольной абляции — скорости отлета $V_{spall} \approx 1.5$ км/с и соответствующего эффективного давления $P_{calc} \approx \rho_m V_{spall}^2 \approx 5.5$ ГПа, оцененного с использованием уравнения Бернулли. В верхнем пределе $F \approx 1.5$ Дж/см² зависимость $C_S(F)$ на рис. 17 неплохо сшивается с зависимостью скорости расширения факела $V_{exp}(F)$ с характерными значениями $V_{exp} \approx 4-20$ км/с, полученными путем визуализации его динамики в диапазоне $F = 3-15$ Дж/см² (см. рис. 2). Оценки начального давления при разлете факела — 40–500 ГПа, полученные исходя из данных $V_{exp}(F)$ с помощью формулы [59]

$$P_S \approx \frac{\gamma + 1}{2} \rho_S C_S^2 \quad (2)$$

для $C_S \approx V_{exp}$ и адиабатического соотношения $\gamma = 5/3$ для атомного пара кремния, разумно согласуются с оценками абляционного давления для других материалов при похожих условиях абляции [39, 60].

5. ОБСУЖДЕНИЕ

5.1. Фотовозбуждение

Предполагаемые механизмы вложения энергии УКИ в видимом и УК-диапазонах в кремний — однофотонное не прямое поглощение (ОФП) и прямое двухфотонное поглощение (ДФП) — рассматривались ранее в работах [11, 51, 54], причем, благодаря высокой симметрии кубической кристаллической решетки материала, оба фото процесса представляются принципиально возможными (детали см. в работе [61]), однако их относительную важность в условиях возбуждения интенсивными УКИ еще только предстоит выяснить. Кроме того, для фотонов видимого и ИК-диапазонов в Λ -области зоны Бриллюэна в условиях существенной (около 50 %) и мгновенной в масштабе УКИ электронной перенормировки ширины запрещенной зоны кремния [62] до 1.5–1.7 эВ может проявляться также прямое ОФП.

Тем не менее наблюдаемое в эксперименте соотношение порогов для кремния

$$\frac{F_{frag}}{F_{spall}} = \frac{0.65 - 0.70 \text{ Дж/см}^2}{0.5 \text{ Дж/см}^2} \approx 1.3-1.4$$

представляет, скорее, квадратный корень из его типичного значения (около 1.5 [10, 13, 36, 37, 45]) для других полупроводников и полуметаллов с задомо однофотонным поглощением УКИ. Известно, что такое типичное соотношение $F_{frag}/F_{spall} \approx 1.5$ [10, 13, 36, 37, 45] соответствует отношению критической температуры вещества и его нормальной температуры кипения [58], близкому к 3/2 в соответствии с термодинамическим соотношением Гулдберга–Гая [63]. В частности, для кремния указанные выше пороги отвечают характерным уровням вложения энергии и, соответственно, термодинамическим состояниям материала после его адиабатического расширения, например, F_{spall} — расплаву кремния при нормальной температуре кипения $T_{b,0} \approx 3.6 \cdot 10^3$ К [40], и F_{frag} — расплаву кремния вблизи критической точки (критическая температура $T_{cr} \approx 7.9 \cdot 10^3$ К [30]), что соответственно обеспечивает его откольную и фрагментационную абляцию. Тогда соотношение температур $T_{cr}/T_{b,0} \approx 2.2$ для Si, неплохо согласующееся с квадратом соотношения порогов, $(F_{frag}/F_{spall})^2 \approx 1.7-2.0$, может указывать на преимущественно ДФП-характер фотовозбуждения материала УКИ накачки в настоящей работе.

Другим потенциальным свидетельством ДФП-характера фотопоглощения интенсивных УКИ в кремнии является наблюдаемое в эксперименте соотношение $\tau_{dec} \propto F^{-3/2}$ (см. рис. 12). Для

$F > F_{frag}$ время разлета закритического флюида может быть оценено в виде отношения глубины вложения энергии (или постоянного значения δ_{dep} для ОФП, или переменного значения $\tau_{las}/\beta F$ для ДФП) и скорости его разлета, примерно пропорциональной квадратному корню из объемной плотности вложенной энергии (пропорционально $\sqrt{F/\delta_{dep}}$ для ОФП и $\sqrt{\beta F^2/\tau_{las}}$ для ДФП). В результате имеем модельные соотношения вида $\tau_{dec} \propto F^{-1/2}$ (ОФП) и $\tau_{dec} \propto F^{-2}$ (ДФП), из которых, как очевидно, последнее гораздо лучше отвечает эксперименту ($\tau_{dec} \propto F^{-3/2}$), причем небольшую разницу в степенях можно объяснить, например, ростом коэффициента отражения УКИ накачки при высоких значениях F [37], существенно снижающим величину объемной плотности вложенной энергии.

5.2. Плавление

Из наших экспериментальных данных следует, что скорость движения фронта плавления $V_{melt} \leq 0.4$ км/с практически постоянна на глубинах, меньших $Y_{1,max}$ или $Y_{2,max}$ внутри образца кремния соответственно для $\Delta t > 4$ пс (см. рис. 7) или $\Delta t > 20$ пс (см. рис. 18). Указанные постоянные значения V_{melt} означают практически однородный перегрев приповерхностного слоя материала толщиной более $Y_{1,max}$, $Y_{2,max}$ (для поддержания баллистического пробега фронта плавления от поверхности в объем), что хорошо согласуется с большой (около 100 нм) глубиной ОФП- или ДФП-вложений энергии УКИ накачки в кремний (см. рис. 8). Примечательно, что максимальная величина скорости фронта плавления $V_{melt} \leq 0.4$ км/с практически не зависит от F в широком диапазоне 0.23–0.70 Дж/см², что указывает на предельный характер этой скорости. Ее значение находится в количественном согласии с ранее полученными для разных полупроводников значениями 0.35–0.75 км/с [50] (см. также более высокое значение 0.85 км/с для Ge [32]) и теоретически предсказанной ранее с помощью МД-моделирования максимальной скоростью $0.03C_{l,s}$ гетерогенного плавления [64] (в нашем случае, $V_{melt} \approx 0.047C_{l,s}$ для $C_{l,s}(100) = 8.4$ км/с [40]).

Отметим также, что глубина вложения энергии $\delta_{dep} = 146 \pm 14$ нм, полученная при аппроксимации зависимости глубины плавления $Y_{1,max}(F)$ на рис. 8 в приближении однофотонного УКИ возбуждения кремния, находится в хорошем количественном согласии с аналогичными значениями, полученными ранее из измерений глубины кратера в данном ма-

териале [8, 51, 52]. Это означает справедливость использования равновесной скорости звука в расплаве кремния $C_{l,m} \leq 3.9$ км/с [48] в проведенных выше расчетах толщины пленки расплава, т. е. если не полную акустическую релаксацию расплава на пикосекундных временах роста его толщины, то, по крайней мере, связанное с плавлением резкое изменение упругих постоянных и скорости звука (примерно от 9 до 4 км/с) в материале (что, собственно, и позволяет наблюдать пикосекундные акустические реверберации). С другой стороны, четкая привязка появления осцилляций отражения и связанных с ними акустических ревербераций с нарастающими периодами к началу стадии акустической релаксации материала (интересно, что реверберации наблюдаются и после завершения этой стадии, см. рис. 6) может означать, что распространение фронта плавления связано с изменением не только скорости звука, но и плотности материала (т. е. фазовый переход первого рода) до их равновесных значений.

Примечательно, что никаких видимых признаков ранее предсказанного гомогенного плавления [65], характерной чертой которого является объемная нуклеация зародышей новой фазы, не было замечено в нашей работе для кремния при $\Delta t \geq 4$ пс и $F > 0.21$ Дж/см² (см. рис. 5–7), несмотря на существенный однородный перегрев поверхностного слоя материала, вытекающий из наших оценок объемной плотности вложенной энергии и глубины вложения энергии в разд. 3.1. Действительно, акустические реверберации в слое расплава наблюдаются нами, начиная с минимального времени $\Delta t_{min} \approx 4$ пс, что соответствует минимальной начальной толщине расплава $Y_{min} = C_{l,m}\Delta t_{min}/4 \approx 4$ нм для скорости звука $C_{l,m} \approx 4$ км/с [48]. При $F > 0.5$ Дж/см² появление ревербераций при $\Delta t_{min} \approx 20$ пс (см. рис. 14, 18) может означать начальную толщину расплава кремния не более $Y_{min} \approx 15$ нм. Соответственно, последующий монотонный рост периода ревербераций представляет, наиболее вероятно, монотонное движение фронта гетерогенного плавления кремния практически от самой поверхности. Вместе с тем нельзя исключать «гомогенного» плавления самого верхнего, тонкого слоя образца толщиной Y_{min} в промежутке времени Δt_{min} еще до появления акустических ревербераций.

5.3. Кавитация и откольная абляция

Выше было показано, что инициированная УКИ откольная абляция на поверхности кремния является довольно медленным механизмом удаления

вещества, реализующимся на пикосекундно-субнаносекундной шкале после полного теплового расширения и акустической релаксации термического расплава (в подтверждение, см. также недавние МД-расчеты в работе [66]) для времен разрыва, достигающих с ростом F минимального значения $T_{rup} \approx 30\text{--}40$ пс (см. рис. 12). Поэтому откольный механизм абляции для образцов кремния актуален при воздействии не только УКИ, но и, как очевидно, лазерных импульсов даже пикосекундной (примерно 10 пс) длительности.

Допороговый обратимый разрыв пленки расплава кремния чуть ниже (в пределах 15 %) порога откольной абляции F_{spall} (см. рис. 9, 10) после длительной (до 0.5 нс) задержки уже по окончании акустической релаксации соответствует резкому включению термической флуктуационной кавитации в квазиравновесном терморасширенном расплаве. В результате механизм разрыва при откольной абляции расплава кремния имеет, в целом, комбинированную термомеханическую природу, что и предсказывалось ранее для этого материала [30]. Однако в настоящей работе как обратимый (допороговый), так и необратимый (надпороговый) разрыв расплава существенно задержан по отношению к предшествующему термическому расширению, что соответствует фазе максимального смещения поверхности в ходе расширения, а не промежуточным фазам смещения с максимальной кинетической энергией, которая, как предполагается [30], является основной движущей силой кавитации. Кроме того, несмотря на завершение термического расширения еще до разрыва и откола в таком квазиравновесном разгруженном расплаве, измеренные скорости отлета $V_{spall} \approx 0.7\text{--}1.5$ км/с в несколько раз выше предсказанных путем МД-расчетов для такой непрерывной, полностью механической откольной абляции кремния [30]. Кроме того, акустические реверберации в расплаве кремния наблюдаются с практически нормальной продольной скоростью звука $C_{l,m} \approx 4$ км/с (а не с минимальной продольной скоростью звука $C_{l,m} \approx 10$ м/с, характерной для паро-капельной смеси [58]) вплоть до его обратимого разрыва при $F \leq F_{spall}$ и необратимого разрыва при $F_{spall} \leq F \leq F_{frag}$ с последующим формированием подповерхностного пузыря или отколом пленки расплава, а не разлетом неоднородной паро-капельной смеси [30]. Жидкий характер пленки пузыря подтверждается полным восстановлением отражения расплава, $R_{2\omega, melt} \approx 0.72$, сразу после его обратимого разрыва при допороговых значениях $F \leq F_{spall}$ (см. рис. 9, 10).

Позиция обратимого (допорогового) разрыва

пленки расплава, $y \approx 10$ нм, несмотря на быстрое снижение величины T_{rup} с ростом F , практически не зависит от монотонно растущей максимальной глубины расплава $Y_{2,max} > y$ в узком диапазоне $F \leq F_{spall}$. Это подразумевает, что в допороговых условиях позиция разрыва пленки расплава определяется не простым динамическим сложением возбужденных УКИ промежуточных встречных (прямой и отраженной на фронте плавления) волн разрежения, что обычно предполагается для преимущественно механической откольной абляции [58], а, скорее, высоколокализованной пороговой кавитацией при низких положительных давлениях в терморасширенном расплаве, положение которой связано с пространственным распределением вложенной энергии УКИ.

Аналогично, окончательная глубина кратера откольной абляции, X , вначале (при $F \geq F_{spall}$) также существенно меньше $Y_{2,max}$, однако по мере спада зависимости времени разрыва $T_{rup}(F)$ (см. рис. 12), определяющего на момент разрыва толщину пленки расплава $Y_{2,max}$ величиной $V_{melt}T_{rup}$ (для предельной скорости движения фронта плавления $V_{melt} \approx 0.4$ км/с), сравнивается с величиной $Y_{2,max}$ и остается сопоставимой в области F вплоть до F_{frag} (см. рис. 8). Соответственно, откольной абляции подвергается вся существующая в момент $\Delta t = T_{rup}$ пленка расплава (разрыв по фронту плавления), что не противоречит данным рис. 9, 10 и результатам моделирования на рис. 11.

С одной стороны, жесткая граница расплав/твердая фаза с $\rho_m C_{l,m} < \rho_s C_{l,s}(100)$ примечательна тем, что отражение на ней волн давления, осциллирующих в пленке расплава, происходит с сохранением фазы. Поэтому амплитуды падающей и отраженной волн на границе складываются, что способствует откольной абляции в фазе разрежения (фотомеханическая модель откольной абляции [67]). Действительно, механическая составляющая откола монотонно растет в области $F > F_{spall}$, где задержка разрыва T_{rup} убывает вплоть до величины характерного времени акустической релаксации пленки расплава τ_{dec} (см. рис. 12), т. е. когда пленка расплава уже растянута вследствие теплового расширения, но реверберации волн давления в ней еще не затухли.

С другой стороны, с ростом $F > F_{spall}$ плотность объемной энергии в поверхностном слое материала также возрастает, что должно увеличивать глубину откольной абляции в случае ее фотомеханического механизма. На самом деле при быстром росте степени перегрева материала имеет место быстрое сниже-

ние $T_{rup}(F)$ (см. рис. 12) при одновременном слабом уменьшении величины X в диапазоне $F \leq F_{frag}$, что указывает, скорее, на более высокую скорость кавитации вблизи спинодали расплав/пар при низких положительных давлениях на поверхности терморасширенного, акустически разгруженного расплава в процессе его преимущественно термического флуктуационного разрыва. В таких условиях, положение поверхности разрыва внутри пленки расплава будет определяться, в первую очередь, пространственным распределением объемной плотности вложенной энергии внутри пленки, предшествующей динамикой теплового расширения и параметрами кинетики нуклеации паровых пузырьков, причем в таких околоспинодальных условиях нуклеация может даже облегчаться гетерогенным характером этого процесса на фронте плавления, где также постоянно имеет место разрежение материала в силу фазового скачка плотности при образовании более плотного расплава. Действительно, дно кратеров в режиме откольной абляции имеет значительную нанощероховатость, нарастающую по частоте появления и амплитуде нанопичков к центру кратера (см. рис. 4z). Это в соответствии с предсказаниями МД-расчетов [13, 29–31] может означать, что разрыв происходит неоднородно, а путем промежуточного нановспенивания на поверхности разрыва, замораживающегося в виде остаточной нанощероховатости.

5.4. Фрагментация

При плотностях энергии УКИ выше F_{frag} верхний слой расплава кремния представляет собой закритический флюид с объемной плотностью энергии, превышающей теплоту испарения материала, равную $3.5 \cdot 10^5$ Дж/моль [40]. Это подтверждается оценками объемной плотности вложенной энергии (примерно $(1 - R_{s,\omega})F/\delta_{dep}$ для ОФП и $(1 - R_{s,\omega})^2\beta F^2/\tau_{las}$ для ДФП), которые дают для коэффициента отражения s -поляризованного, наклонно (45°) падающего УКИ накачки при $R_{s,\omega} \approx 0.37$ [37] и $F \approx 0.7$ Дж/см² величины соответственно $3 \cdot 10^4$ Дж/см³ ($3.6 \cdot 10^5$ Дж/моль) или $1.1 \cdot 10^5$ Дж/см³ ($1.3 \cdot 10^6$ Дж/моль). В обоих случаях оценочные значения превышают теплоту испарения кремния ($3.5 \cdot 10^5$ Дж/моль [40]), что указывает на достаточное вложение энергии для превращения материала в пар при околоспинодальных условиях [68].

В результате такой слой закритического флюида кремния разлетается на пикосекундных временах еще до начала откольной абляции, как свидетельствуют дополнительный абляционный вклад

$(X - Y_{2,max})$ при соотношении $X \geq Y_{2,max}$ для $F \geq F_{frag}$ (см. рис. 8), а также соотношения для мгновенной толщины расплава $Y_2(F < F_{frag}) > Y_2(F \geq F_{frag})$ на рис. 18, указывающие на ее меньшую величину при $F \geq F_{frag}$ уже на временах $\Delta t \leq 25$ пс $< T_{rup}(F)$ (см. рис. 12, 18). Такое быстрое удаление материала происходит, по-видимому, вследствие гидродинамического расширения закритического флюида кремния с его одновременной фрагментацией в паро-капельную смесь на характерных временах $\tau_{dec} \leq 30$ пс (см. рис. 12), и поэтому может быть реализовано как для УКИ, так и для коротких (1–10 пс) пикосекундных лазерных импульсов. Минимальные давления (более 4 ГПа) и скорости (более 2 км/с) разлета закритического флюида кремния на рис. 17 оказываются соответственно много ниже и выше, чем ранее предсказанные в ходе МД-расчетов значения 28 ГПа и 0.8 км/с [30]. Очевидно, что, как и в случае откольной абляции, расхождение данных эксперимента и МД-расчетов требует коррекции расчетных параметров для данного материала [30] для удовлетворительного описания его различных термодинамических (например, критических параметров) и гидродинамических характеристик.

Интересно, что сверхкороткий реактивный эффект при разлете верхнего слоя закритического флюида кремния оказывают на лежащий ниже расплав высокие давления, достаточные для квазиупругого выброса расплава в центре ванны (см. возвышение отвержденного расплава в центре кратера на рис. 13в,г), характерного для мгновенного удара по поверхности жидкости в отличие от относительно медленного бокового выплескивания расплава при воздействии (суб)наносекундных и более длинных лазерных импульсов. Примечательно, что ранее предполагалось (как важное технологическое преимущество) отсутствие эффекта выплескивания расплава материалов при их абляции именно ультракороткими лазерными импульсами.

6. ВЫВОДЫ

В настоящей работе динамика плавления, кавитации, откольной и фрагментационной абляции поверхностного слоя кремния, инициированных одиночными УКИ, была разносторонне охарактеризована с помощью оптической микроскопии отражения с временным разрешением, бесконтактной ультразвуковой и оптической эмиссионной диагностики, сканирующей электронной, атомно-силовой и оптической интерференционной микроскопии.

Скорость движения фронта плавления материала вблизи его поверхности и мгновенная толщина расплава были измерены для различных значений плотности энергии УКИ в ходе наблюдений пикосекундных осцилляций отражения пробного лазерного излучения, связанных с соответствующими реверберациями гиперзвуковых волн, возбужденных УКИ в результате фотовозбуждения, нагревания и плавления материала. Реверберации имеют место вследствие разности акустических импедансов твердого материала и его расплава в процессе роста последнего, но только до момента откольной или фрагментационной абляции, которые меняют динамику роста слоя расплава и прослеживаются через мгновенные изменения периода ревербераций.

Сравнение значений максимальной толщины расплава и соответствующей глубины кратера показывает уменьшение толщины расплава на момент абляции, несмотря на увеличение плотности энергии УКИ, благодаря уменьшению времени задержки разрыва терморасширенного расплава вблизи фронта плавления от сотен до десятков пикосекунд с ростом его перегрева или еще более быстрой (пикосекундной) фрагментации верхнего слоя расплава в состоянии закритического флюида, инерциально сжатого до давлений в несколько десятков или даже сотен гигапаскаль. Последующие субнаносекундные осцилляции отражения пробного излучения, представляющие временную динамику интерференции реплик импульса пробного излучения, отраженных от поверхности откольной пленки расплава и его оставшейся пленки, характеризуют динамику откольной абляции в том, что касается кинематики движения откольной пленки.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№10-08-00941, 11-02-01202, 11-08-01165) и Министерства образования и науки РФ (контракт № 2012-1.2.2-12-000-1011-055).

ЛИТЕРАТУРА

1. D. Bäuerle, *Laser Processing and Chemistry*, Springer, Berlin–Heidelberg (2000).
2. M. Ishino, A. Ya. Faenov, M. Tanaka et al., *J. Appl. Phys.* **109**, 013504 (2011).
3. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, А. Е. Лигачев и др., *Письма в ЖЭТФ* **94**, 289 (2011).
4. C. V. Shank, R. Yen, and C. Hirlimann, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 454 (1983).
5. M. C. Downer, R. L. Fork, and C. V. Shank, *J. Opt. Soc. Amer. B* **2**, 595 (1985).
6. P. Saeta, J.-K. Wang, Y. Siegal et al., *Phys. Rev. Lett.* **67**, 1023 (1991).
7. K. Sokolowski-Tinten, H. Schulz, J. Bialkowski et al., *Appl. Phys. A* **53**, 227 (1991).
8. J. Bonse, *Appl. Phys. A* **84**, 63 (2006).
9. X. Y. Wang and M. C. Downer, *Opt. Lett.* **17**, 1450 (1992).
10. K. Sokolowski-Tinten, S. I. Kudryashov, V. Temnov et al., *Springer Ser. Chem. Phys.* **66**, 425 (2000).
11. T. Y. Choi and C. P. Grigoropoulos, *J. Appl. Phys.* **92**, 4818 (2002).
12. J. Bonse, G. Bachelier, J. Siegel et al., *J. Appl. Phys.* **103**, 054910 (2008).
13. Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский, С. И. Ашитков и др., *ЖЭТФ* **134**, 5 (2008).
14. K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri et al., *Proc. SPIE* **3343**, 46 (1998).
15. С. И. Ашитков, М. Б. Агранат, Г. И. Канель и др., *Письма в ЖЭТФ* **92**, 568 (2010).
16. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, S. I. Ashitkov et al., *Contrib. Plasma Phys.* **51**, 367 (2011).
17. X. Zeng, X. L. Mao, R. Greif, and R. E. Russo, *Appl. Phys. A* **80**, 237 (2005).
18. T. Y. Choi, D. J. Hwang, and C. P. Grigoropoulos, *Appl. Surf. Sci.* **197**, 720 (2002).
19. I. Mingareev and A. Horn, *Appl. Phys. A* **92**, 917 (2008).
20. N. Zhang, X. Zhu, J. Yang et al., *Phys. Rev. Lett.* **99**, 167602 (2007).
21. R. K. Raman, Y. Murooka, C. Ruan et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 077401 (2008).
22. Y. Miyamoto, H. Zhang, and D. Tomanek, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 208302 (2010).
23. R. Nüske, C. von Korff Schmising, A. Jurgilaitis et al., *Rev. Sci. Instr.* **81**, 013106 (2010).
24. G. Sciani and R. J. D. Miller, *Rep. Progr. Phys.* **74**, 096101 (2011).
25. A. M. Lindenberg, S. Engemann, K. J. Gaffney et al., *Phys. Rev. Lett.* **100**, 135502 (2008).

26. F. Carbone, P. Baum, P. Rudolf, and A. H. Zewail, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 035501 (2008); F. Dorchies, A. Levy, C. Coyon et al., *Phys. Rev. Lett.* **107**, 245006 (2011).
27. P. G. Debenedetti, *Metastable Liquids: Concepts and Principles*, Princeton Univ. Press, Princeton (1996).
28. L. Zhigilei, Z. Lin, and D. S. Ivanov, *J. Phys. Chem. C* **113**, 11892 (2009).
29. E. Leveugle, D. S. Ivanov, and L. V. Zhigilei, *Appl. Phys. A* **79**, 1643 (2004).
30. P. Lorazo, L. J. Lewis, and M. Meunier, *Phys. Rev. B* **73**, 134108 (2006).
31. A. K. Upadhyay, N. A. Inogamov, B. Rethfeld et al., *Phys. Rev. B* **78**, 045437 (2008).
32. K. Sokolowski-Tinten, C. Blome, C. Dietrich et al., *Phys. Rev. Lett.* **87**, 225701 (2001).
33. H. Enquist, H. Navirian, T. N. Hansen et al., *Phys. Rev. Lett.* **98**, 225502 (2007); M. Nicoul, V. Shymanovich, A. Tarasevich et al., *Appl. Phys. Lett.* **98**, 191902 (2011).
34. A. Couairon and A. Mysyrowicz, *Phys. Rep.* **441**, 47 (2007).
35. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, Л. В. Селезнев и др., *Письма в ЖЭТФ* **90**, 199 (2009).
36. D. von der Linde, K. Sokolowski-Tinten, and J. Bialkowski, *Appl. Surf. Sci.* **109–110**, 1 (1997).
37. С. И. Кудряшов, В. И. Емельянов, *ЖЭТФ* **121**, 113 (2002).
38. *Handbook of Optical Constants of Solids*, ed. by E. D. Palik, Acad. Press, Orlando (1998).
39. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, С. В. Макаров и др., *Письма в ЖЭТФ* **94**, 35 (2011).
40. И. С. Григорьев, Е. З. Мейлихов, *Физические величины*, Энергоатомиздат, Москва (1991).
41. К. М. Шварев, Б. А. Баум, Н. В. Гельд, *ФТТ* **16**, 3246 (1974).
42. H. W. K. Tom, G. D. Aumiller, and C. H. Brito-Cruz, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1438 (1988); K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, and D. von der Linde, *Phys. Rev. B* **51**, 14186 (1995).
43. B. C. Gundrum, R. S. Averback, and D. G. Cahill, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 011906 (2007).
44. S. L. Johnson, P. A. Heimann, A. M. Lindenberg et al., *Phys. Rev. Lett.* **91**, 157403 (2003).
45. M. C. Downer and C. V. Shank, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 761 (1986); A. Cavalleri, K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski et al., *J. Appl. Phys.* **85**, 3301 (1999).
46. П. Ю. М. Кардона, *Основы физики полупроводников*, Физматлит, Москва (2002).
47. Е. Ю. Тонков, *Фазовые превращения соединений при высоком давлении*, Металлургия, Москва (1988).
48. N. M. Keita and S. Steinemann, *Phys. Lett. A* **72**, 153 (1979).
49. В. Э. Гусев, А. А. Карабутов, *Лазерная оптоэлектроника*, Наука, Москва (1991).
50. P. H. Bucksbaum and J. Bokor, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 182 (1984); K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, M. Boing et al., *Phys. Rev. B* **58**, R11805 (1998); W.-L. Chan, R. S. Averback, D. G. Cahill, and A. Lagoutchev, *Phys. Rev. B* **78**, 214107 (2008).
51. D. J. Hwang, C. P. Grigoropoulos, and T. Y. Choi, *J. Appl. Phys.* **99**, 083101 (2006).
52. S. Lee, D. Yang, and S. Nikumb, *Appl. Surf. Sci.* **254**, 2996 (2008).
53. D. H. Reitze, T. R. Zhang, W. M. Wood et al., *J. Opt. Soc. Amer. B* **7**, 84 (1990).
54. K. Sokolowski-Tinten and D. von der Linde, *Phys. Rev. B* **61**, 2648 (2000); М. Б. Агранат, С. И. Анисимов, С. И. Ашитков и др., *Письма в ЖЭТФ* **83**, 592 (2006).
55. V. V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou et al., *J. Opt. Soc. Amer. B* **23**, 1954 (2006).
56. В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов, К. Nishihara, *Письма в ЖЭТФ* **87**, 491 (2008).
57. O. S. Heavens, *Optical Properties of Thin Solid Films*, Butterworth Sci. Publ., London (1955).
58. B. Rethfeld, K. Sokolowski-Tinten, V. V. Temnov et al., *Proc. SPIE* **4423**, 186 (2001).
59. D. Batani, H. Stabile, A. Ravasio et al., *Phys. Rev. E* **68**, 067403 (2003).
60. S. I. Kudryashov, A. A. Ionin, S. V. Makarov et al., *AIP Conf. Proc.* **1464**, 244 (2012).
61. S. I. Kudryashov, *Proc. SPIE* **5448**, 1171 (2004).

62. S. I. Kudryashov, M. Kandyla, C. Roeser, and E. Mazur, *Phys. Rev. B* **75**, 085207 (2007).
63. R. Taft and J. Stareck, *J. Phys. Chem.* **34**, 2307 (1930).
64. D. S. Ivanov and L. V. Zhigilei, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 195701 (2007).
65. B. Rethfeld, K. Sokolowski-Tinten, D. von der Linde, and S. I. Anisimov, *Phys. Rev. B* **65**, 092103 (2002); X.-M. Bai and M. Li, *Phys. Rev. B* **77**, 134109 (2008); G. Rastelli and E. Capelluti, *Phys. Rev. B* **84**, 184305 (2011).
66. С. И. Ашитков, Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский и др., *Письма в ЖЭТФ* **95**, 192 (2012).
67. K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri et al., *Phys. Rev. Lett.* **81**, 224 (1998).
68. С. И. Кудряшов, *Дисс. ... канд. физ.-мат. наук, МГУ* (1999).