

**Проделанная по выполнению плана на 2016 год
работа по проекту № 14-19-01599
с дополнительными материалами (иллюстрациями)**

В полном соответствии с планом работ на год в ходе выполнения проекта в 2016 году была проделана следующая работа по пунктам заявленного плана:

1) Выполнено экспериментальное и теоретическое исследование гидродинамических течений, которые возникают в веществе лазерной мишени при воздействии на нее острогофокусированным ультракоротким лазерным импульсом. В экспериментах, проведенных при тесном сотрудничестве научных групп из ФИАНа, МИФИ, ИАПУ ДВО РАН, ДФУ, ВНИИА им. Н.Л. Духова, ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН по облучению фемтосекундными лазерными импульсами пленки серебра, нанесенной на стеклянную подложку, впервые для визуализации воздействия излучения на мишень наряду со сканирующим электронным микроскопом высокого разрешения был использован химический анализ лазерно-модифицированных пленок методом микроспектроскопии характеристической энергодисперсионной рентгеновской флуоресценции (ЭДРС). Определялись интенсивности линий характеристического рентгеновского L-излучения серебра и K-излучения кремния из подложки. Это позволило в экспериментах четко следить за распределением вещества при лазерной абляции серебряной пленки. Были проведены эксперименты при различной величине поверхностной плотности лазерного излучения (флюенса) с длительностью импульса 200 фс. Величина флюенса в экспериментах составляла 0.37 Дж/см^2 , 0.53 Дж/см^2 , 1.05 Дж/см^2 . Получены изображения в сканирующем микроскопе структур, образующихся на поверхности пленки в процессе поглощения ультракороткого лазерного импульса, возникновения двухтемпературного состояния в веществе пленки, распространения тепла от поверхности вглубь пленки, плавления, гидродинамического движения вещества, его остывания и вторичной кристаллизации для всех трех значений флюенса. Полученные структуры сильно отличаются по форме, являя собой многообразие имеющих практическое значение наноструктурных видоизменений поверхности, в частности, для целей наноплазмоники (рис. 1) [3].

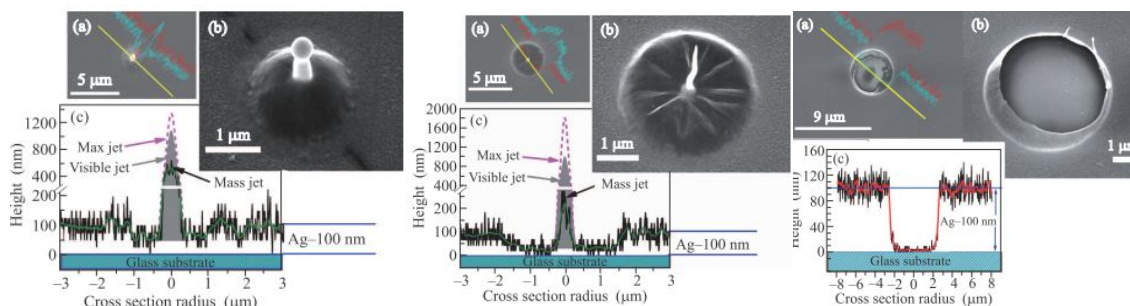


Рис. 1. Изображения в сканирующем электронном микроскопе (СЭМ) структур, образующихся на поверхности пленки из серебра в результате поглощения ультракороткого лазерного импульса при разных значениях флюенса, слева направо: 1 (0.37 Дж/см^2), 2 (0.53 Дж/см^2) и 3 (1.05 Дж/см^2) [10]. (а) – СЭМ-изображение структуры (вид сверху), сформированной единичным импульсом 0.37 Дж/см^2 . На СЭМ-изображение наложены ненормированные ЭДРС-профили Ag (голубая кривая) и Si (красная кривая) вдоль желтого радиуса сканирования. (б) – СЭМ-изображение той же структуры под углом обзора 30° после ЭДРС-анализа. Здесь темная косая линия – ожог поверхности по линии сканирования в ходе ЭДРС-анализа. (с) – Нормированный радиальный профиль толщины слоя серебра по сечению этой структуры (mass jet, черная кривая). Штриховая кривая (max jet) показывает максимально возможную высоту струи при ее видимой остаточной толщине у основания и отсутствии вылета капель. Профиль серого цвета дает видимый размер струи по СЭМ-изображению (visible jet)

Было проведено теоретическое исследование с молекулярно-динамическим моделированием проведенных экспериментов. В качестве материала для исследования был выбран другой благородный металл – золото. При молекулярно-динамическом моделировании важным является потенциал взаимодействия атомов, участвующих в моделировании. В ходе выполнения работ по проекту нами был разработан учитывающий многочастичные взаимодействия в металлах потенциал метода погруженного атома для золота. Параметры в нем находились из проведенных методом функционала плотности расчетов электронных состояний и энергии кристалла при одноосных деформациях, чтобы максимально учесть условия растяжения вещества мишени при лазерной абляции. Для описания всех стадий абляции, включающих поглощение излучения, нагрев пленки, ее плавление, движение расплава, его кристаллизацию требуется рассмотрение области мишени, содержащей не менее 10^{11} атомов. Напрямую моделирование с таким количеством атомов пока находится за пределами возможностей молекулярно-динамического подхода. Однако эта трудность была нами преодолена с использованием двух важных решений. Движение пленки было разделено на два этапа. Первый – это движение пленки от момента поглощения лазерного импульса до отделения ее от подложки. На этом этапе существенно использована малость толщины пленки по сравнению с диаметром лазерного пятна на мишени. Эта малость позволила нам рассматривать каждую локальную точку на плоскости подложки в одномерном приближении с помощью разработанного нами в ходе выполнения проекта двухтемпературного гидродинамического кода без использования более трудоемкой молекулярной динамики. В созданном гидродинамическом коде использованы полученные нами двухтемпературные термодинамические функции вещества металла с неравными температурами электронов и ионов и двухтемпературные кинетические коэффициенты, определяющие распространение тепла по веществу мишени. В результате решения системы гидродинамических уравнений определяются поля скорости и температуры как функции расстояния до центра пятна на момент отделения пленки от подложки. Далее эти поля используются в качестве начальных данных при молекулярно-динамическом моделировании полета, остывания и кристаллизации пленки в трехмерной геометрии. Чтобы промоделировать в молекулярно-динамическом подходе эту более позднюю стадию с используемым нами числом атомов, составляющим $(2 \div 200) \cdot 10^6$, на 3-5 порядков меньшим, чем в экспериментальной ситуации, мы воспользовались гидродинамическим подобием, позволяющим заменить систему с большим числом атомов системой с меньшим числом с равными безразмерными параметрами подобия. Число таких параметров в рассматриваемой задаче равно двум (капиллярный, задающий отношение скорости за счет капиллярных сил к скорости вещества в пленке и параметр охлаждения, равный отношению скорости фронта кристаллизации к скорости вещества). Это позволило провести молекулярно-динамическое моделирование на большом интервале времени от стадии отделения жидкой пленки от подложки до ее замерзания (рис. 2,3). Такое моделирование для пленки золота на стеклянной подложке для трех случаев, отличающихся величиной флюенса лазерного излучения, соответствующих условиям проведенных нами экспериментов на пленке серебра, показало полное соответствие структур, образующихся на поверхности пленки, наблюдавшихся в экспериментах и в результате компьютерного моделирования

[9,10].

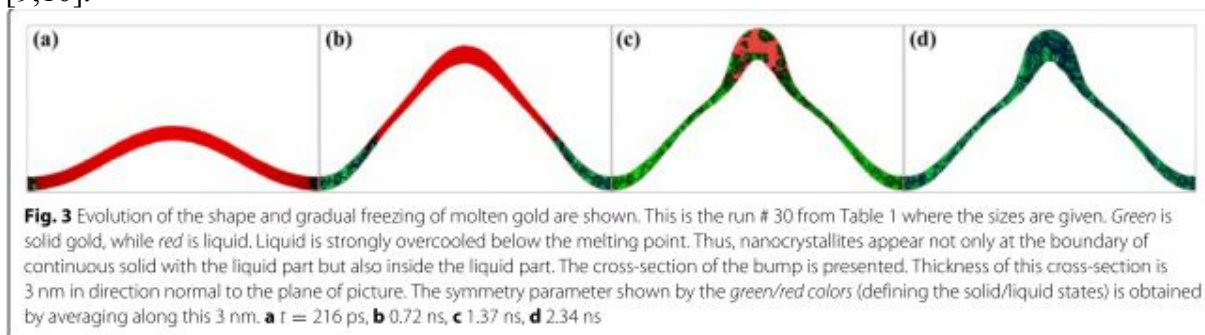


Рис. 2. Эволюция формы и частичное замерзание расплавленной золотой пленки с выпуклостью нанометровых размеров (нанобампа), полученное в молекулярно-динамическом моделировании [10].

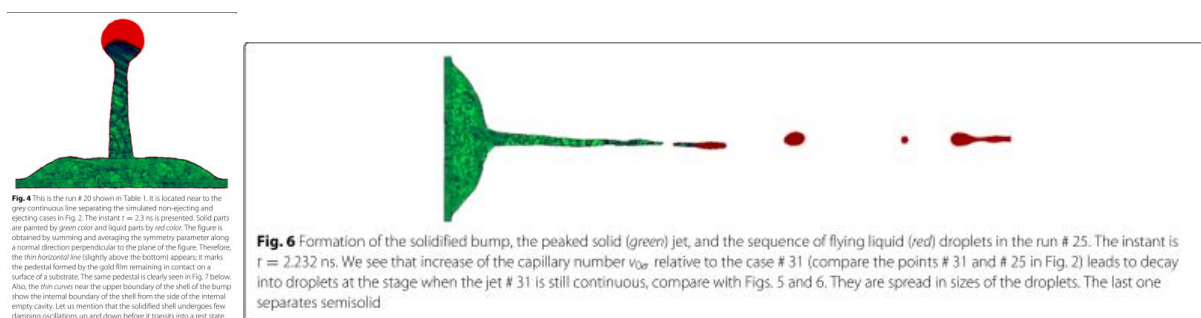


Рис. 3. Формирование нанобампа с каплей на вершине (слева) и отрыв жидких капель (справа) на пленке золота в молекулярно-динамическом моделировании [10].

Проведено молекулярно-динамическое моделирование движения атомов в пленке золота на диэлектрической подложке с добавлением электронной компоненты для учета электронной теплопроводности и обмена энергией между электронами и решеткой методом Монте-Карло. Для этого каждый ион содержал один электрон, что обеспечивало электронейтральность рассматриваемой системы в любой момент времени. Соседние атомы обменивались электронами с частотой, которая находилась из известного по экспериментальным данным для жидкого золота коэффициента теплопроводности. Пары атомов, в которых осуществлялся обмен электронами выбирались случайно, ограничиваясь только положениями, находящимися внутри радиуса обрезания. Кроме того, был в том же методе Монте-Карло произведен учет обмена энергией между электронами и ионами. Для расчета динамики ионов использовался написанный нами межатомный потенциал с учетом многочастичных эффектов в приближении погруженного атома. Чтобы использовать при моделировании образования наноструктур на поверхности мишени достижимое в расчетах число атомов, которое на несколько порядков меньше присутствующего в физически важной области мишени, использовалось гидродинамическое подобие с двумя безразмерными параметрами, совпадающими для реальной физической области задачи и для модельной системы с существенно меньшим числом атомов. Получена картина формирования наноструктур на поверхности пленки золота посредством образования струй на поверхности жидкого купола, их разрушения на капли в верхней части из-за сил поверхностного натяжения и замерзания оставшейся на мишени части в виде твердого купола с сильно вытянутым острием в верхней части купола. С возрастанием поглощенного флюенса и увеличением начальной скорости движения, уменьшением капиллярного параметра подобия наблюдается разрушение жидкой оболочки над кратером в мишени вблизи зоны фазового перехода жидкость-твердое

тело с образованием небольшого количества менее вытянутых струек. Их отвердевание вызывает появление структуры на поверхности мишени в виде нанокороны. Такие структуры, идентифицированные нами в молекулярно-динамическом моделировании, наблюдались и в натуральных экспериментах с пленками благородных металлов [6-8]. Примеры эволюции пленки по расчетам 3D молекулярно-динамическим расчетам [6] приведены на рис. 4,5.

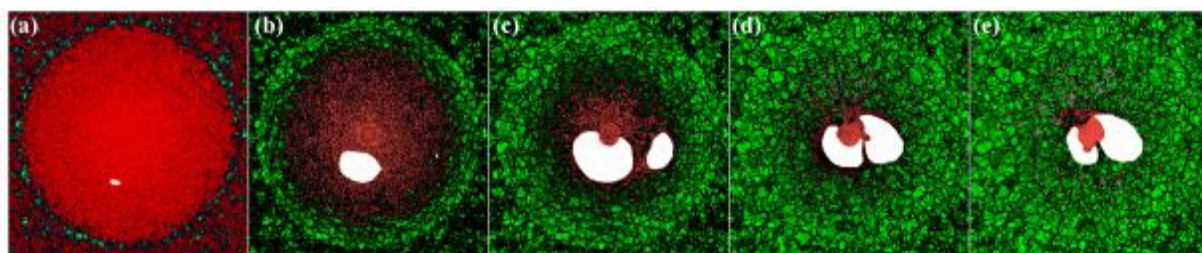
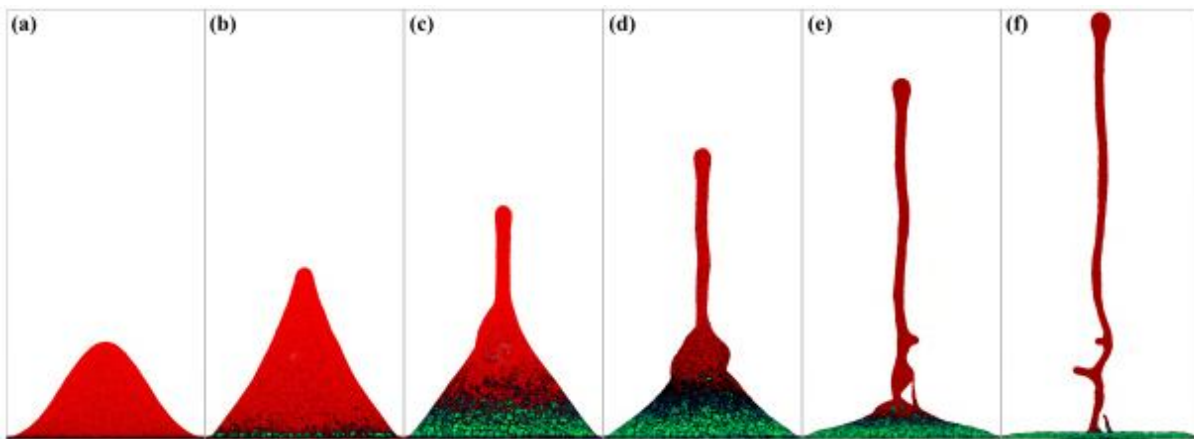


Рис. 4. Формирование и эволюция нанобампа, когда капиллярные силы останавливают раздутие купола (верхний ряд – вид сбоку при временах (a) 72 пс, (b) 144 пс, (c) 216 пс, (d) 290 пс, (e) 380 пс, (f) 475 пс; нижний ряд – вид сверху при тех же временах)

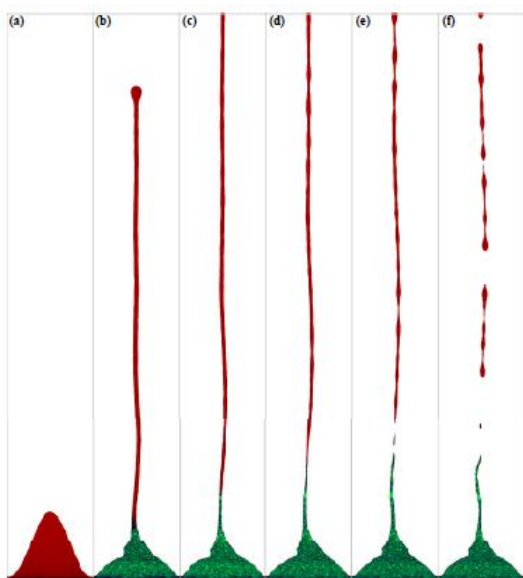


Рис. 5. Образование и развитие нанобампа с его отвердеванием и отрывом части жидкой струи. (a) 72 пс, (b) 650 пс, (c) 860 пс, (d) 1.1 нс, (e) 1.3 нс, (f) 1.5 нс

Численно и экспериментально рассмотрен эффект воздействия импульсов титан-сапфирового лазера фемтосекундного диапазона длительности на 60-100 нм пленки золота, помещенные на стеклянный субстрат. Энергия в импульсе бралась достаточной для абляции пленки. Впервые нами показано, что есть несколько различных режимов абляции и формирования трехмерных структур, зависящих от значения поглощенного флюенса (поверхностной плотности энергии лазерного излучения) и адгезионной прочности между пленкой и подложкой. А именно, при слабой адгезии существует пороговое значение флюенса, при котором начинается отслоение пленки (порог отслоения), а также порог начала абляции (разрушения пленки).

Выше нижнего порога (порога отслоения) вся пленка отслаивается от подложки. Выше более высокого порога абляции в пленке возникает разрыв вблизи ее средней части. Внешняя половина пленки отделяется, а ее внутренняя половина остается на стеклянной подложке. Для пленок из золота и серебра высокой степени чистоты существуют оба указанных пороговых значения флюенса, т.к. такие пленки как раз слабо связаны со стеклом. Порог отслоения исчезает в случае сильной адгезии металла и подложки, в этом случае отслоение пленки в целом становится невозможным. Разрыв же пленки при превышении порога абляции при этом по-прежнему происходит, потому что величина порога абляции не зависит от сцепления металла с подложкой. Экспериментально большая величина адгезии получена нами при помещении между золотом и стеклом промежуточного тонкого слоя хрома. Скорость пленки после того, как она отделяется от подложки, мала в диапазоне флюенсов, находящемся между двумя пороговыми значениями, потому что акустический импеданс стекла мал по сравнению с импедансом пленки из золота. Поэтому в ходе процесса отслоения абсолютные значения (положительные или отрицательные) давлений в области контакта металла и подложки в несколько раз меньше, чем абсолютная величина давления в золотой пленке. Однако выше порога абляции скорость внешней части пленки становится в несколько раз больше, потому что эта скорость не зависит от величины акустического импеданса подложки. Это обстоятельство объясняет, почему на поверхности мишени после лазерного воздействия появляются такие трехмерные структуры, как наноструи над выпуклостями нанометровых размеров в случае слабого сцепления. Скорость пленки при этом должна быть не слишком большой. Это позволяет силам поверхностного натяжения и происходящей из-за отвода тепла кристаллизации расплавленной пленки остановить расширение выпуклости и отрыв и удаление верхней ее части [11,16].

Впервые было проведено изучение резонансного рассеяния света от индивидуальных нанопустот, изготовленных воздействием одиночных ультракоротких импульсов лазерного излучения на пленки благородных металлов на стеклянной подложке, используя конфокальную микроспектроскопию темного поля. Было найдено, что спектральные положения пиков резонансного рассеяния в видимой области спектра полностью определяются размером нанопустот. Эти окрашенные геометрические резонансы были связаны нами с возбуждением и эффективным рассеянием поперечных плазмонных мод высокого порядка в нанопустотах. Это было со всей определенностью показано с помощью комплексного вычислительного подхода, который включает в себя двухтемпературную гидродинамику металла пленки, молекулярно-динамическое и Монте-Карло моделирование распределения материала внутри нанопустот и последующие электромагнитные расчеты, опирающиеся на полученные при таком моделировании формы нанопустот. Экспериментально обнаружено 6-кратное в среднем усиление сигнала фотолюминесценции от слоев комплексных солей алкилированного европия, внедренных в органическую матрицу, и молекул красителя родамина 6G (R6G) на пленке серебра. Кроме того, отдельные нанопустоты в серебре

показывают пространственно усредненное усиление рамановского сигнала на R6G в $5 \cdot 10^4$ раз, а также зависящее от формы и размера усиление фотолюминесценции, достигающее до 13 раз для конкретных наноструктур. Созданная малозатратная эффективная методика изготовления нанополостей в благородных металлах может быть использована для окрашивания металлов, высокопроизводительной и дешевой печати субстратов для плазмоники, Представленная в результате выполнения работ по проекту высокорентабельная лазерная печать на основе быстрого плавления, деформации и повторного затвердевания тонких пленок благородных металлов дает хорошо контролируемый способ создания отдельных нанопустот и их упорядоченных массивов большой емкости с очень гладкими стенками, Он представляется значительно более выгодным и эффективным по сравнению с другими способами их изготовления, например, на основе осаждения металла на нанотекстурированный шаблон [13].

2) Отличие температур электронов и ионов в металле, достигающее даже для лазерных импульсов умеренной интенсивности величин порядка нескольких эВ, приводит к необходимости использования двухтемпературных термодинамических функций и кинетических коэффициентов, входящих в систему гидродинамических уравнений. Эти двухтемпературные термодинамические функции и кинетические коэффициенты на ранней стадии взаимодействия с лазерным излучением определяют динамику разлета вещества мишени в процессе абляции. Исследование внутренних свойств металлов в двухтемпературных состояниях как важнейшая задача при изучении их абляции под действием ультракоротких лазерных импульсов проведено в ходе выполнения проекта в 2016 г. При этом для исследования динамики вещества в процессе лазерной абляции очень важными становятся кинетические коэффициенты, определяющие передачу тепла от электронной подсистемы к ионной, а также теплопроводность за счет электронов. Адекватный учет теплопроводности металла при различающихся температурах электронов и ионов как в твердой, так и жидкой фазах, является серьезной проблемой, важной для задач абляции металлов под действием лазерных импульсов короткой длительности. Температура электронов и профиль давления в объемных лазерных мишенях существенно зависят от распространения тепла вглубь мишени. В свою очередь, определяющий скорость распространения тепла коэффициент электронной теплопроводности сам зависит от электронной и ионной температур в двухтемпературной ситуации. Возникающие профили давления определяют в дальнейшем формирование ударных волн и волн разрежения в веществе мишени и всю картину лазерной абляции. В работах по проекту особое внимание было уделено благородным металлам (золоту, меди и серебру). В этих металлах при не слишком высоких ионных температурах малы частоты электрон-ионных столкновений. Поэтому в них наилучшим образом можно исследовать возрастающий с ростом электронной температуры вклад электрон-электронных столкновений в коэффициент теплопроводности металла. Для нахождения коэффициента теплопроводности металлов, а также удельного сопротивления в высокотемпературной области фазовой диаграммы в неравновесной двухтемпературной ситуации нами использованы два подхода. Во-первых, использовано приближение кинетического уравнения для кинетических коэффициентов, в котором учитываются как электрон-ионные, так и электрон-электронные столкновения вплоть до электронных температур порядка нескольких эВ. В исследуемых нами благородных металлах (золото, медь, серебро) для теплопроводности важны столкновения s- и p-электронов между собой, а также их столкновения с d-электронами. Проведены расчеты эффективных частот электрон-электронных столкновений (s-p- электронов проводимости между собой и электронов проводимости с d-электронами) для золота, меди и серебра путем нахождения из кинетических уравнений парциальных частот столкновений, зависящих от модуля волнового вектора электрона, и использовании их в интегралах по волновым векторам

электронов в коэффициентах Онзагера для учета условия отсутствия электрического тока при теплопроводности. Получены аналитические аппроксимации эффективных частот межэлектронных столкновений как функций электронной температуры и плотности исследуемых металлов. Из кривой холодного давления для золота, меди и серебра получена зависимость дебаевской температуры от плотности кристаллических фаз этих металлов, а с ней и зависимость частот электрон-фононных столкновений от плотности и ионной температуры, а с использованием известных экспериментальных значений электропроводности этих металлов в жидкой фазе получены частоты электрон-ионных столкновений в жидкой фазе. Соответственно в зависимости от электронной, ионной температур и плотности золота, меди и серебра в приближении кинетического уравнения проведен расчет коэффициента электронной теплопроводности и получены удобные в использовании выражения для коэффициента электронной теплопроводности в твердой и жидкой фазах этих металлов (Рис. 6)[2].

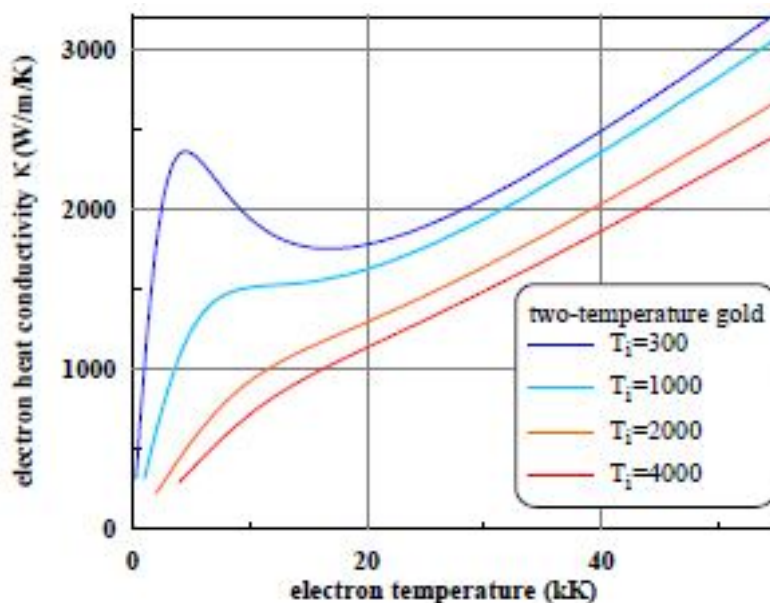


Рис. 6. Коэффициент электронной теплопроводности золота в зависимости от электронной температуры для четырех значений ионной температуры T_i (в К) на изохоре нормальной плотности [2].

В другом подходе к проблеме нахождения кинетических коэффициентов конденсированных сред, в частности, металлов, в двухтемпературном состоянии, созданном под действием ультракоротких лазерных импульсов, мы опираемся на первопринципные расчеты электронной энергетической зонной структуры металлов методом функционала плотности и метод квантовой молекулярной динамики в сочетании с теорией Кубо-Гринвуда для расчета кинетических коэффициентов. В соответствии с этим в рамках работ по проекту проведены расчеты с использованием методов линеаризованных присоединенных плоских волн и псевдопотенциала, а также в более общей постановке и без использования приближения псевдопотенциала, для нахождения спектра электронных состояний меди в неравновесной двухтемпературной ситуации. Проведена проверка сходимости всех параметров наших первопринципных расчетов. Рассчитанная плотность электронных состояний с учетом высокой температуры электронов на двухтемпературной стадии воздействия ультракороткого лазерного излучения на металлы была использована для нахождения в меди важнейшего для задач двухтемпературной гидродинамики кинетического коэффициента, определяющего скорость электрон-ионного теплообмена. Этот коэффициент был рассчитан в зависимости от электронной температуры и плотности вещества (Рис. 7) При температурах ионов выше дебаевской (характерных для наших задач) в твердой фазе металла он не зависит от ионной температуры. Расчет

электронного спектра из первых принципов в псевдопотенциальном приближении при различном выборе псевдопотенциала и в более трудоемком подходе, строго учитывающем все атомные электроны без использования приближения псевдопотенциала, вместе с квантовой молекулярной динамикой для ионных конфигураций и теорией Кубо-Гринвуда был использован для нахождения электронного коэффициента теплопроводности меди в зависимости от электронной температуры и плотности (Рис. 8). Результаты основанной на кинетическом уравнении модели для теплопроводности меди хорошо согласуются с данными, полученными с помощью теории Кубо-Гринвуда [14].

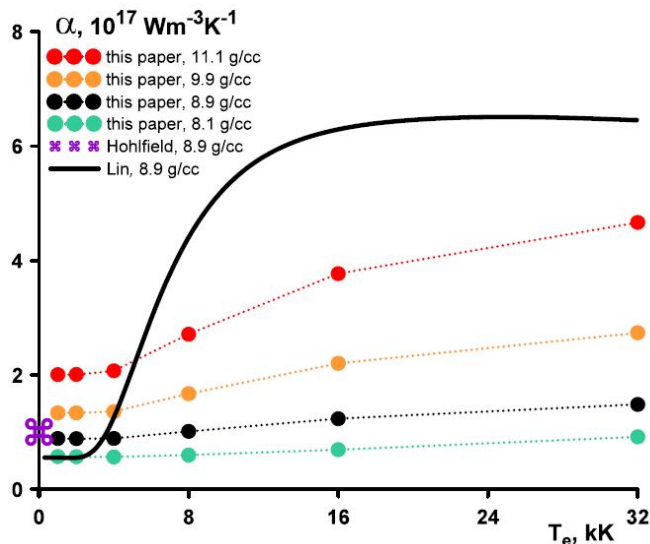


Рис.7. Коэффициент электрон-ионного теплообмена меди как функция электронной температуры при различной плотности [14].

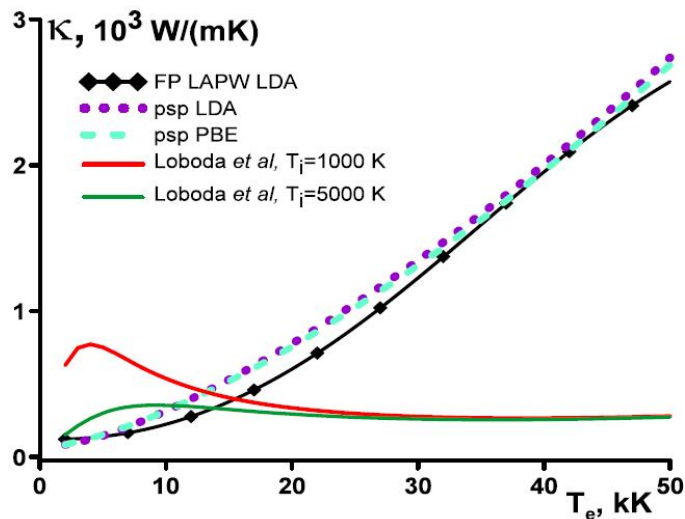


Рис. 8. Электронный коэффициент теплопроводности меди в зависимости от электронной температуры. Показаны результаты при выборе различных псевдопотенциалов (psp LDA, psp PBE) и расчеты, в которых не используется приближение псевдопотенциала (FP LAPW LDA) [14].

Экспериментально на Cr:F лазере с длиной волны света греющего импульса 1240 нм, пробного импульса 620 нм и теоретически рассмотрена абляция пленки из золота на стеклянной подложке. В проведенных экспериментах с помощью интерферометра Майкельсона нами получены значения фазового сдвига и коэффициента отражения пробного лазерного излучения при его взаимодействии с поверхностью пленки после облучения греющим импульсом лазера. С помощью этих двух параметров проведено

восстановление вытекающей из результатов экспериментов комплексной диэлектрической проницаемости и комплексного показателя преломления. В наших экспериментах обнаружены скачки в изменении диэлектрической проницаемости во времени (Рис. 9). Подробный анализ и интерпретация наблюдающихся в эксперименте изменений оптических параметров металла возможны только в сочетании с адекватной теоретической моделью и численными расчетами влияния воздействия ультракоротких лазерных импульсов на оптические свойства металлической мишени [2].

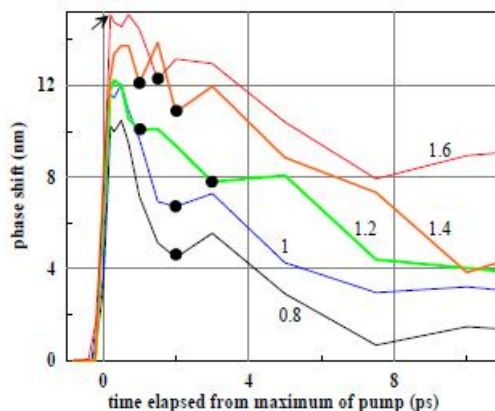


Рис.9. Экспериментальные значения амплитуды и положения скачков фазы в золоте при возбуждении электронов проводимости фемтосекундным лазерным импульсом. Цифрами при кривых показано отношение флюенса к порогу абляции [2].

Для нахождения связи оптических параметров, определяемых из экспериментов, с внутренними параметрами металла в процессе изменения его состояния был проведен теоретический расчет гидродинамического движения пленки и ее термодинамического состояния с помощью разработанного нами гидродинамического кода. Толщина пленки составляла в эксперименте 500 нм, что существенно превосходит глубину прогрева пленки за счет электронной теплопроводности и электрон-ионного теплообмена. Поэтому при проведенном нами теоретическом расчете пленка рассматривалась как массивный образец. Система уравнений созданного нами гидродинамического кода была использована для нахождения распределения электронной и ионной температур на ранних стадиях взаимодействия образца золота с лазерным излучением длительности 80 фс. В этом гидродинамическом коде использованы полученные нами аналитические аппроксимирующие выражения для коэффициента электронной теплопроводности в зависимости от электронной и ионной температур и плотности вещества. Проведено исследование влияния другого важного в двухтемпературной ситуации коэффициента - величины коэффициента электрон-ионного теплообмена α (недостаточно хорошо определяемого как экспериментально, так и теоретически) на параметры вещества пленки (Рис.10). Кроме распределения температур электронов и ионов в процессе гидродинамического моделирования находилось временное развитие профилей электронного и ионного давлений и плотности вещества мишени, а также проводилось исследование зависимости этих профилей от скорости обмена энергией между электронами и ионами (Рис.11,12). Найденное распределение плотности на ранней стадии гидродинамического движения вещества образца показывает наличие резкой границы конденсированного вещества даже при поверхностной плотности энергии лазерного излучения (флюенса), достаточной для плавления приграничной области образца. С учетом этого обстоятельства было проведено теоретическое рассмотрение оптических свойств золота в двухтемпературном состоянии с применением френелевского приближения на границе раздела сред для коэффициента отражения и фазового сдвига пробного лазерного излучения. Используемые в этом приближении значения комплексной диэлектрической проницаемости вещества

мишени учитывают как электрон-ионную, так и электрон-электронную релаксацию в благородных металлах, а также межзонные электронные переходы в них. Полученное в результате теоретического и численного расчета временное изменение диэлектрической проницаемости золота, вычисленной с использованием в ней рассчитанных нами электронных времен релаксации в процессе изменения двухтемпературного состояния золота, обнаруживает немонотонное поведение и скачки, аналогичные полученным в проведенной экспериментальной работе (рис. 13,14). Такие скачки в диэлектрической проницаемости обусловлены плавлением твердого вещества вблизи границы мишени на стадии, соответствующей моменту, когда теплообмен между электронами и ионами еще не закончен. Таким образом, развитая нами модель позволяет отслеживать фазовые переходы в неравновесном двухтемпературном состоянии металла [2].

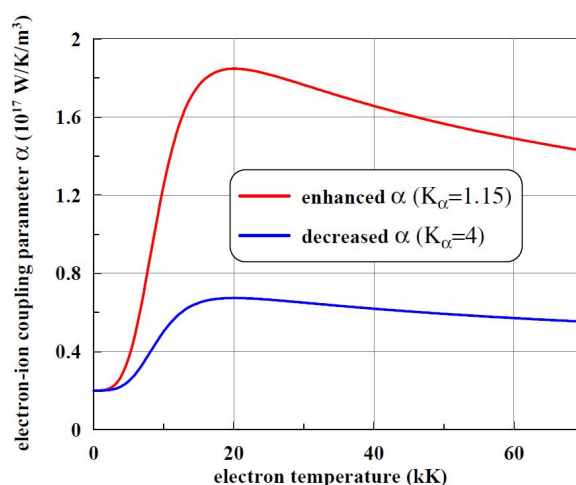


Рис. 10. Зависимость от электронной температуры коэффициента электрон-ионного обмена теплом α для рассматривавшихся нами случаев сильного обмена ($K_\alpha=1.15$) и слабого обмена ($K_\alpha=4$)

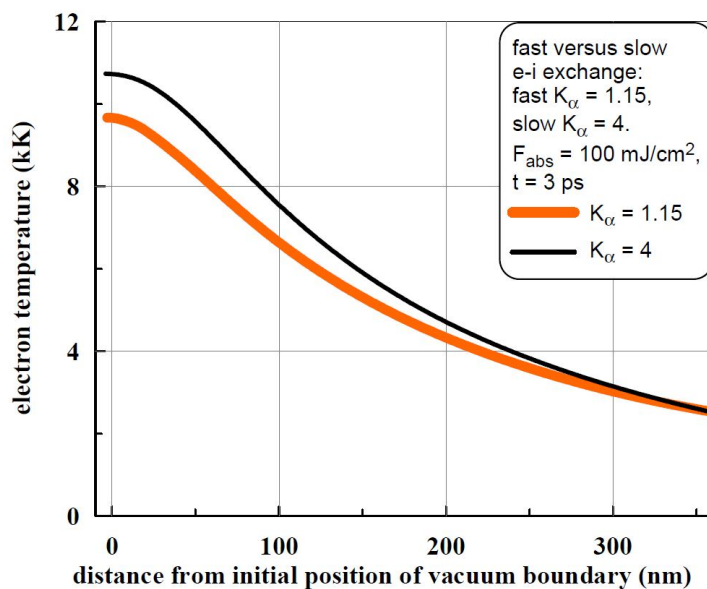


Рис.11. Распределение электронной температуры по толщине пленки из золота в момент времени 3 пс после максимума интенсивности в импульсе. Параметр K_α характеризует скорость электрон-ионного теплообмена. Желтая линия ($K_\alpha=1.15$) соответствует расчетам с более интенсивным обменом энергией между электронами и ионами в отличие от черной ($K_\alpha=4$).

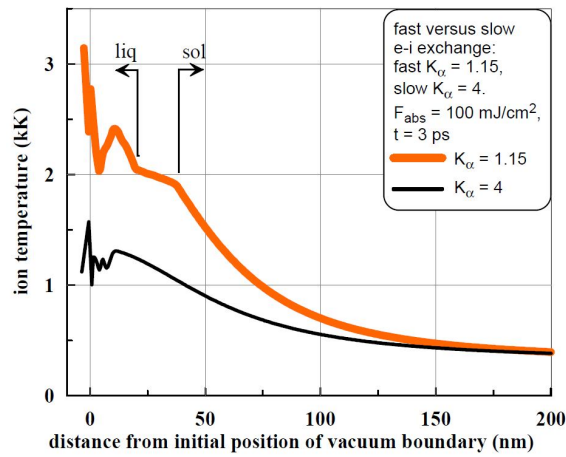


Рис. 12. Распределение ионной температуры в пленке золота на двухтемпературной стадии в тот же момент времени 3 пс. Стрелками над желтой линией с большой скоростью электрон-ионного теплообмена показаны области расплава и твердой фазы, в то время как при небольшой скорости обмена (черная линия) металл остается в твердой фазе. Область между стрелками заполнена двухфазной смесью кристалл-жидкость.

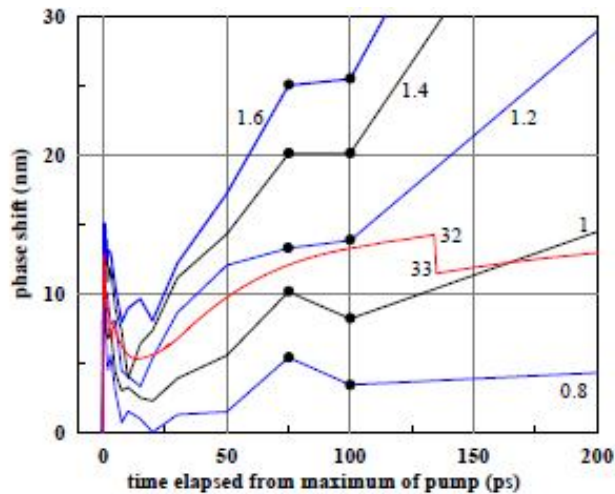


Рис. 13. Изменение во времени фазового сдвига на пленке золота в эксперименте и в двухтемпературном гидродинамическом моделировании (красная кривая). Пары кружков отмечены области предполагаемой рекристаллизации жидкости. Числа при экспериментальных кривых равны отношению флюенса к порогу абляции.

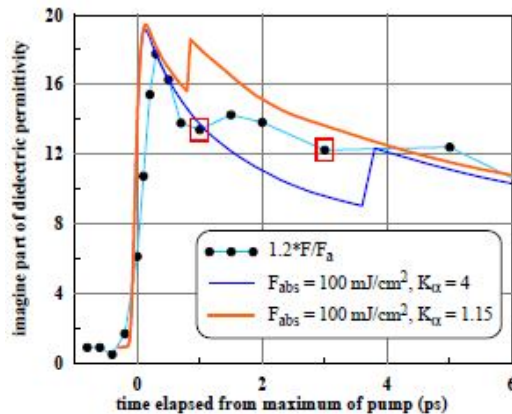


Рис. 14. Мнимая часть диэлектрической проницаемости (экспериментальная – точки) и теоретическая (красная и синяя линии при разной скорости электрон-фононного обмена энергией) с характерными скачками в области плавления.

3) Продолжена работа по совершенствованию гидродинамических кодов, используемых нами при исследовании различных случаев абляции конденсированных тел под действием ультракоротких лазерных импульсов. Они уже дают возможность рассмотрения в качестве мишеней как жидкостей, так и твердых тел, с учетом сдвиговых напряжений в твердой фазе вещества на начальной стадии взаимодействия твердых мишеней с лазерным излучением и на заключительной стадии лазерной абляции при рекристаллизации полученного в результате лазерного воздействия расплава металла. Разработанные нами одномерные гидродинамические коды как в плоской геометрии, так и при цилиндрической и сферической симметрии, позволяют рассматривать как объемные мишени, так и тонкие пленки, находящиеся либо в свободном состоянии, либо помещенные на субстрат. В качестве субстрата для металлических пленок в экспериментах, проводимых нами и другими научными группами, используется стекло. Соответственно твердый субстрат с характерными для стекол термодинамическими и кинетическими характеристиками используется в разработанных и применяемых нами для теоретического решения задач абляции и наноструктурирования металлов на подложке гидродинамических кодах. При этом характерной особенностью наших кодов является учет в них двухтемпературного состояния вещества металлической лазерной мишени, возникающего в результате ультракороткого лазерного воздействия. Такое состояние возникает вследствие поглощения энергии лазерного излучения электронами металла и сравнительно медленной передачи энергии от электронов существенно более тяжелым ионам, особенно затрудненной у благородных металлов (медь и особенно серебро и золото) из-за большой массы их атомов. Именно исследованию благородных металлов, в том числе численно с помощью гидродинамических кодов, уделено наибольшее внимание в ходе осуществления работ по проекту в 2016 г. В двухтемпературном состоянии металлов в гидродинамические коды как для расчета объемных мишеней, так и для изучения пленок металлов, включены двухтемпературные термодинамические функции, такие как внутренняя энергия, электронная и ионная теплоемкости, электронное и ионное давление. Также в эти коды включены кинетические характеристики металла в двухтемпературном состоянии, определяющие перенос тепла в нем. Это коэффициент электрон-ионного теплообмена, определяющий скорость передачи тепла от электронов ионам и коэффициент электронной теплопроводности. Кроме того, в созданные нами гидродинамические коды включается критерий образования паровой фазы, кавитации жидкости при ее растяжении в процессе лазерной абляции, и таким образом в работах по проекту уже в гидродинамическом приближении было проведено исследование разрушения как массивных образцов, так и пленок. Тем не менее, кинетика образования новых фаз, а это в наших задачах кавитация, плавление, кристаллизация расплава, лучше исследуется при молекулярно-динамическом моделировании, широко представленном в работах по проекту в 2016 г. Но гидродинамическое моделирование является в наших работах существенно менее затратным по компьютерным ресурсам, чем молекулярно-динамическое моделирование, что является его несомненным преимуществом и позволяет широко использовать его в тех областях, где оно адекватно описывает круг происходящих явлений. При этом возможность решения одних и тех же задач в общей области применимости как гидродинамического приближения, так и молекулярно-динамического моделирования, служит одним из способов проверки адекватности подхода к расчетам и правильности результатов. В наших работах в 2016 г., в частности, гидродинамические расчеты использованы на начальной стадии лазерной абляции, при абляционных смещениях в направлении лазерного импульса, меньших поперечных размеров облученной области, при этом полученные в результате этих расчетов параметры вещества мишени, такие как температура, плотность, поле

скоростей использовались далее как начальные параметры для более трудоемких молекулярно-динамических расчетов. [2,5, 9-12].

Проведено гидродинамическое моделирование ранней стадии абляции фемтосекундными лазерными импульсами, которая продолжается несколько первых пикосекунд после пиковой интенсивности импульса лазера. Внимание было сосредоточено на отличии в поведении мишеней из золота различной толщины: сверхтонких пленок с толщиной порядка глубины скин-слоя или меньше, тонких пленок с толщиной, в 4-7 раз превышающей глубину скин-слоя и объемных мишеней (с толщиной, на порядок и более превышающих глубину скин-слоя). Показано, что это отличие определяется охлаждением первоначально нагретых в скин-слое электронов за счет электронной теплопроводности, передачей энергии от электронов ионам и, что важно, гидродинамикой разгрузки, вызванной повышенным электронным давлением. Когда толщина пленки оказывается больше глубины прогретого за счет электронной теплопроводности и электрон-ионного теплообмена слоя мишени, для золота составляющего 150-200 нм, термомеханическая абляция происходит из-за появления отрицательных напряжений и торможения расширяющегося вещества мишени за счет пространственной неоднородности области нагрева. При толщине пленки, меньшей ширины области прогрева в массивном образце, возникает дополнительный механизм абляции, обусловленный быстрым падением полного давления в первые 2-3 пс за счет сильного уменьшения электронного давления, первоначально сильно повышенного из-за поглощения электронами энергии лазерного импульса ультракороткой длительности. Электронное давление быстро уменьшается за счет большой величины электронной теплопроводности; как показывают наши расчеты, коэффициент электронной теплопроводности при температурах электронов, близких к 1 эВ, существенно превосходит привычные значения, соответствующие нормальным условиям. При этом охлаждение за счет теплопроводности нуждается в стоке энергии, который мал в случае пленок небольшой толщины или совсем отсутствует в случае сверхтонких пленок. Поэтому в случае сверхтонких пленок обсуждаемый нами механизм разрушения пленки отсутствует [5].

4) Экспериментально исследовано возбуждение ударных волн лазерными импульсами и их распространение в железе. Эксперименты проведены в сотрудничестве с Фемтосекундным лазерным центром ОИВТ РАН. Пленка железа была нанесена на стекло, греющий лазерный импульс длительности 200 фс падал на металлическую пленку, пройдя слой стекла, в то время как зондирующий луч падал на пленку со стороны свободной поверхности. В одном из экспериментов толщина пленки составляла 250 нм, в другом - 540 нм при толщине стекла 150 мкм. С помощью интерферометра Майкельсона была проведена диагностика движения задней свободной поверхности пленки. Такая техника сверхбыстрой интерферометрической диагностики была применена для измерения смещений поверхности мишени с пространственным разрешением 1-2 нм и ее скорости после численного дифференцирования. В выполненных экспериментах нами найдено, что для обеих толщин пленки имеет место двухволновая структура волны сжатия, приходящей на заднюю поверхность пленки. Измеренная большая скорость первой волны соответствует метастабильной упругой ударной волне, в то время как меньшая скорость второй выходящей на заднюю поверхность волны указывает на следующую за ней пластическую ударную волну [1].

Наряду с поставленными экспериментами было проведено молекулярно-динамическое моделирование распространения индуцированных лазерным излучением ударных волн в свободной пленке железа. Для проведения такого моделирования был сконструирован новый многочастичный потенциал модели погруженного атома для межатомных взаимодействий в железе (рис. 15). Параметры потенциала и его функциональная

форма были специально подобраны, чтобы воспроизводить в железе фазовый переход из объемно-центрированной кубической (оцк) решетки в гексагональную плотноупакованную (гпу) решетку (переход оцк-гпу). Толщина пленки при молекулярно-динамическом моделировании была взята такой же, как и в экспериментальных условиях. При моделировании пленка располагалась ориентированной относительно направления падающего лазерного излучения в трех кристаллографических направлениях: [100],[110],[111]. Молекулярно-динамическое моделирование было использовано для определения условий наблюдения полиморфного перехода в железе, не обнаруженного нами в процессе эксперимента с фемтосекундным лазером с флюенсом падающего на стекло излучения 4 Дж/см^2 . В результате моделирования найдено, что распространение ударной волны в направлении [100] наиболее благоприятно для фазового перехода из оцк фазы в гпу фазу. Проведенное моделирование показало, что в отличие от направления [100], ударные волны, распространяющиеся в направлениях [110] и [111], должны иметь существенно большую величину давления, чтобы иметь возможность вызвать такой структурный переход. В монокристаллической пленке, ориентированной в направлении [100], переход легко происходит уже в упругой ударной волне с давлением 20 ГПа. В то же время при ориентировке пленки в направлениях [110] и [111] фазовый переход оцк-гпу наблюдается на первых 100-200 нм от переднего по отношению к лазерному излучению края пленки, где давление в ослабевающей по мере распространения вглубь пленки ударной волне превышает 30 ГПа. Подобно тому, что наблюдалось в эксперименте, в молекулярно-динамическом моделировании мы также не обнаружили структурного перехода в ослабленной ударной волне на задней по отношению к падающему лазерному излучению стороне пленки после прохождения ударной волной значительной в наших условиях толщины пленки 540 нм. Структурный переход оцк-гпу имеет место на ранней стадии распространения волны, когда ударное давление достаточно для того, чтобы его вызвать. С помощью компьютерного моделирования проведено исследование обратного фазового перехода гпу-оцк и найдено, что такой переход инициируется в разгрузочной части ударной волны при давлении 13 ГПа и быстро завершается, когда давление падает до 8 ГПа [4].

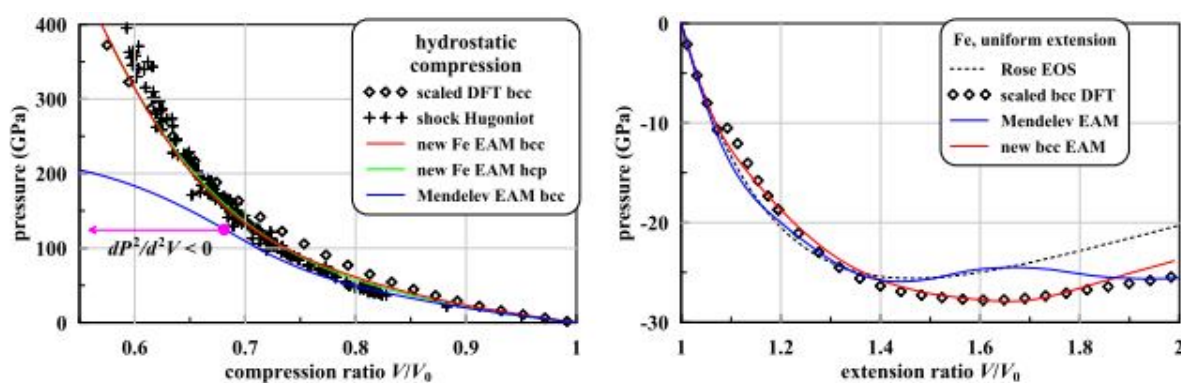


Рис.15. Холодные кривые гидростатического давления (слева) и сдвигового напряжения в железе, полученные с помощью нового разработанного потенциала метода погруженного атома [4].

5) В тесном сотрудничестве с группой ученых из ведущих научных центров Японии, США, Европы, среди которых Osaka University, Japan Synchrotron Radiation Research Institute, Synchrotron X-ray Station at SPring-8, RIKEN Spring-8 Center, Sayo, Hirishima University (Япония), University of Nevada (США), Universite Pierre et Marie Curie, Ecole Polytechnique (Франция) представлен эффективный косвенный метод оценки силы создаваемой лазером в мишени ударной волны, что позволяет вести мониторинг ее

воспроизводимости при каждом лазерном выстреле. Этот метод основан на измерении рентгеновского излучения из абляционной плазмы фокусирующим спектрометром высокого разрешения. Оптический греющий лазер с энергией 1.0 Дж и длительностью импульса 660 пс был использован для облучения пленок твердых материалов различной толщины, содержащих кислород, алюминий, железо и тантал. Высокая чувствительность и разрешающая способность рентгеновского спектрометра позволяют получать спектры при каждом лазерном выстреле и контролировать флуктуации спектральной интенсивности с точностью до 2%, что соответствует точности определения температуры электронов плазмы 5%-7% в pump-probe экспериментах физики высоких плотностей энергии. При нано- субнаносекундной длительности лазерного импульса с относительно низкими интенсивностями излучения и для не слишком тяжелых химических элементов в составе мишени, у которых для стабильных изотопов отношение заряда ядер к массовому числу ~ 0.5 , электронная температура T оказывается связанной с интенсивностью лазерного излучения I соотношением $T \sim I^{(2/3)}$, что дает оценку интенсивности лазерного излучения, поглощенного мишенью, с точностью 8%-10%. Таким образом, измерение электронной температуры в плазме позволяет сделать непрямую оценку потока лазерной энергии на мишень, а ее флуктуации дают нам возможность от выстрела к выстрелу следить за воспроизводимостью силы ударных волн с высокой точностью [15].

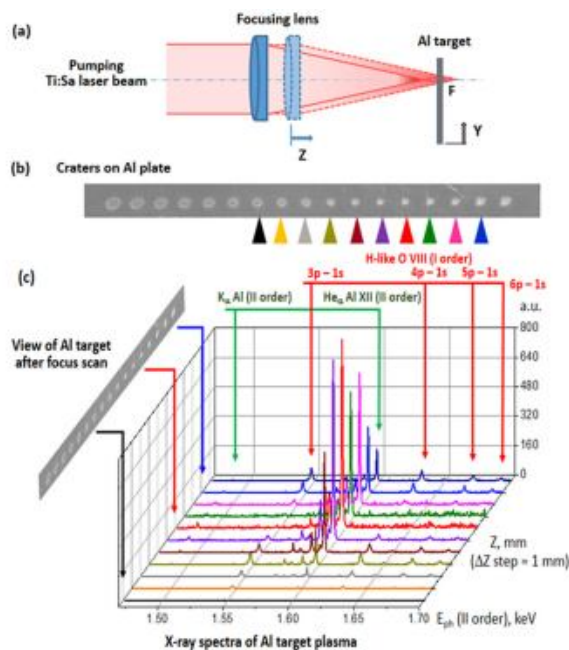


FIG. 2. (a) Scheme of experiments for checking the laser focused spots at the surface of Al plate target. (b) The images of the target irradiated by Ti:Sapph 660 ps laser and used for evaluation of the evolution of laser spot on the target. Laser spots marked by different colors corresponding to a obtained X-ray spectra below. (c) Typical K-shell spectra of Al in second order of mica crystal reflection. Spectra of H-like O VIII were also measured in the first order of mica crystal reflection, which demonstrated the presence of impurities or oxidation in the Al foils used.

Рис. 16. Схема эксперимента по определению температуры плазмы и интенсивности лазерного излучения [15].

Перечень публикаций за год по результатам проекта

1. Ашитков С.И., Жаховский В.В., Иногамов Н.А., Комаров П.С., Агранат М.Б., Канель Г.И. (Ashitkov, S. I.; Zhakhovsky, V. V.; Inogatov, N. A.; Komarov, P. S.; Agranat, M. B. & Kanel, G. I.) **The behavior of iron under ultrafast shock loading driven by a femtosecond laser** AIP Conference Proceedings (2017 г.) [WOS](#) [SCOPUS](#) [РИНЦ](#)

2. [Ашитков С.И., Комаров П.С., Жаховский В.В., Петров Ю.В., Хохлов В.А., Юркевич А.А., Ильницкий Д.К., Иногамов Н.А., Агрант М.Б. \(Ashitkov, S. I.; Komarov, P. S.; Zhakhovskiy, V. V.; Petrov, Y. V.; Khokhlov, V. A.; Yurkevich, A. A.; Ilnitskiy, D. K.; Inogatov, N. A.; Agranat, M. B.\) Ablation of gold irradiated by femtosecond laser pulse: experiment and modeling](#) *Journal of Physics: Conference Series* (2016 г.) ^{WOS SCOPUS РИНЦ}

3. [Данилов П. А., Заярный Д. А., Ионин А. А., Кудряшов С. И., Руденко А. А., Кучмижак А. А., Витрик О. Б., Кульчин Ю. Н., Жаховский В. В., Иногамов Н. А. \(Danilov P.A., Zayarny D.A., Ionin A.A. Kudryashov S.I., Kuchmizhak A.A., Vitrik O.B., Kulchin Yu.N., Zhakhovskiy V.V., Inogatov N.A.\) Перераспределение материала при фемтосекундной лазерной абляции тонкой серебряной пленки](#) *Письма в ЖЭТФ* (2016 г.) ^{WOS SCOPUS РИНЦ}

4. [Жаховский В.В., Мигдал К.П., Иногамов Н.А., Анисимов С.И. \(Zhakhovskiy, V. V.; Migdal, K. P.; Inogatov, N. A. & Anisimov, S. I.\) MD simulation of steady shock-wave fronts with phase transition in single-crystal iron.](#) *AIP Conference Proceedings* (2017 г.) ^{WOS SCOPUS РИНЦ}

5. [Ильницкий Д.К., Хохлов В.А., Жаховский В.В., Петров Ю.В., Мигдал К.П., Иногамов Н.А. \(Ilnitskiy, D. K.; Khokhlov, V. A.; Zhakhovskiy, V. V.; Petrov, Y. V.; Migdal, K. P., Inogatov, N. A.\) Dynamics of laser ablation at the early stage during and after ultrashort pulse](#) *Journal of Physics: Conference Series* (2016 г.) ^{WOS SCOPUS РИНЦ}

6. [Иногамов Н.А., Жаховский В.В. \(Inogatov N.A., Zhakhovskiy V.V.\) Surface 3D nanostructuring by tightly focused laser pulse: simulations by Lagrangian code and molecular dynamics](#) *Journal of Physics: Conference Series* (2016 г.) ^{WOS РИНЦ}

7. [Иногамов Н.А., Жаховский В.В. \(N.A. Inogatov, V.V. Zhakhovskiy\) SIMULATIONS OF SHORT PULSE LASER-MATTER INTERACTION](#) *Lobachevskii Journal of Mathematics* (2017 г.) ^{SCOPUS}

8. [Иногамов Н.А., Жаховский В.В., Мигдал К.П. \(Inogatov N.A., Zhakhovskiy V.V., Migdal K.P.\) Laser-induced spalling of thin metal film from silica substrate followed by inflation of microbump](#) *Applied Physics A* (2016 г.) ^{WOS SCOPUS}

9. [Иногамов Н.А., Жаховский В.В., Хохлов В.А., Кучмижак А.А., Кудряшов С.И. \(Inogatov, N. A.; Zhakhovskiy, V. V.; Khokhlov, V. A.; Kuchmizhak, A. A., Kudryashov, S. I.\) Blistering of film from substrate after action of ultrashort laser pulse](#) *Journal of Physics: Conference Series* (2016 г.) ^{WOS SCOPUS РИНЦ}

10. [Иногамов Н.А., Жаховский В.В., Хохлов В.А., Петров Ю.В., Мигдал К.П. \(Inogatov N. A., Zhakhovskiy V. V., Khokhlov V. A., Petrov Y. V., Migdal K. P.\) Solitary Nanostructures Produced by Ultrashort Laser Pulse](#) *Nanoscale Research Letters* (2016 г.) ^{WOS SCOPUS}

11. [Иногамов Н.А., Хохлов В.А., Петров Ю.В., Жаховский В.В., Мигдал К.П., Ильницкий Д.К., Хасегава Н., Нишикино М., Ямагиwa М., Ишино М., Кавачи Т., Фаенов А.Я., Пикуз Т.А., Баба М., Минами Ю., Суемото Т. \(Inogatov, N. A.; Khokhlov, V. A.; Petrov, Y. V.; Zhakhovskiy, V. V.; Migdal, K. P.; Ilnitskiy, D. K.; Hasegawa, N.; Nishikino, M.; Yamagiwa, M.; Ishino, M.; Kawachi, T.; Faenov, A. Y.; Pikuz, T.; Baba, M.; Minami, Y. & Suemoto., T.\) Rarefaction after fast laser heating of a thin metal film on a glass mount.](#) *AIP Conference Proceedings* (2017 г.) ^{WOS SCOPUS РИНЦ}

-
12. [Иногамов, Н.А., Жаховский В.В., Хохлов В.А., Петров Ю.В., Мигдал К.П., Анисимов С.И. \(Inogamov, N. A.; Zhakhovsky, V. V.; Khokhlov, V. A.; Petrov, Y. V.; Migdal, K. P. & Anisimov, S. I.\) RAPID NON-EQUILIBRIUM CRYSTALLIZATION OF FLYING MOLTEN THIN SHELL CREATED BY FEMTOSECOND LASER ACTION Scientific-Coordination Workshop on Non-Ideal Plasma Physics November 27–28, 2015, Moscow, Russia Book of Abstracts \(2015 г.\)](#)
-
13. [Кучмижак А.А., Витрик О., Кульчин Ю., Стороженко Д., Майер А., Мирошник А., Макаров С.В., Миличко В.А., Кудряшов С., Жаховский В.В., Иногамов Н.А. \(Kuchmizhak, A.; Vitrik, O.; Kulchin, Y.; Storozhenko, D.; Mayor, A.; Mirochnik, A.; Makarov, S.; Milichko, V.; Kudryashov, S.; Zhakhovsky, V. & Inogamov, N.\) Laser printing of resonant plasmonic nanovoids Nanoscale \(2016 г.\)](#) ^{WOS} ^{РИИЦ}
-
14. [Мигдал, К.П., Петров, Ю.В., Ильницкий Д.К., Жаховский В.В., Иногамов, Н.А., Хищенко К.В., Князев, Д.В., Левашов П.Р. \(Migdal, K. P.; Petrov, Y. V.; Il'nitsky, D. K.; Zhakhovsky, V. V.; Inogamov, N. A.; Khishchenko, K. V.; Knyazev, D. V. & Levashov, P. R.\) Heat conductivity of copper in two-temperature state Applied Physics A \(2016 г.\)](#) ^{WOS} ^{SCOPUS} ^{РИИЦ}
-
15. [Пикуз Т.А., Фаенов А.Я., Озаки Н. ... Жаховский В.В., Сафронова А.С., Стаффорд А., Скобелев И.Я., Пикуз С.А. и др. \(Pikuz, T. A.; Faenov, A. Y.; Ozaki, N. ... Zhakhovsky, V.; Inogamov, N.; Safronova, A. S.; Stafford, A.; Skobelev, I. Y.; Pikuz, S. A. et.al.\) Indirect monitoring shot-to-shot shock waves strength reproducibility during pump–probe experiments Journal of Applied Physics \(2016 г.\)](#) ^{WOS} ^{SCOPUS}
-
16. [Хохлов В.А., Иногамов Н.А., Жаховский В.В., Ильницкий Д.К., Мигдал К.П., Шепелев В.В. \(V.A. Khokhlov, N.A. Inogamov, V.V. Zhakhovsky, D.K. Ilnitsky, K.P. Migdal and V.V. Shepelev\) Film-substrate hydrodynamic interaction initiated by femtosecond laser irradiation AIP Conference Proceedings \(2017 г.\)](#) ^{WOS} ^{SCOPUS} ^{РИИЦ}