

УДК: 535.211, 532.529.5, 536.421

РОЛЬ ГЕОМЕТРИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ ПРИ ФЕМТОСЕКУНДНОЙ ЛАЗЕРНОЙ АБЛЯЦИИ

**Иногамов Н.А.¹, Жаховский В.В.², Хохлов В.А.¹, Хищенко К.В.³, Петров Ю.В.¹,
Ильницкий Д.К.², Мигдал К.П.²**

¹ *Институт теоретической физики им. Л.Д.Ландау РАН, Черноголовка*

² *– ВНИИА им. Н.Л.Духова, Москва*

³ *– Объединенный институт высоких температур РАН, Москва*
nailinogamov@gmail.com

Аннотация

Фемтосекундное лазерное воздействие достаточной энергетикой формирует разнообразные структуры на поверхности облучаемой мишени, что находит применение в важных технологических приложениях. В работе рассматривается влияние геометрических параметров (радиус лазерного пучка и толщина пленки) и поглощенной мишенью энергии на морфологию поверхностных структур. Изучены два случая. В первом случае пленка толстая (объемная мишень) и радиус пучка намного превышает длину волны оптического излучения. Во втором случае наоборот пленка тонкая, а радиус пучка мал – порядка длины световой волны. В первом случае от поверхности мишени отслаивается тонкая оболочка (откольный слой), которая летит с примерно постоянной скоростью, удаляясь от поверхности мишени. В работе приводятся результаты расчетов, в которых изучается динамика разлета оболочки. На поверхности мишени остается нанорельеф, который образуется вследствие механического вспенивания расплавленного слоя металла, капиллярного распада расширяющейся пены и замораживания летящих остатков разрушенной пены прямо в процессе их движения.

Эффекты, связанные с поверхностным натяжением горячих расплавов металлов весьма существенны и во втором случае. В результате остросфокусированного ультракороткого лазерного воздействия облученное пятно пленки плавится, вздувается и затвердевает в виде купола, который может иметь морфологические особенности, например, в виде заострения на вершине.

GEOMETRICAL CONSTRAINS AND FEMTOSECOND LASER ABLATION

**Inogamov N.A.¹, Zhakhovsky V.V.², Khokhlov V.A.¹, Khishchenko K.V.³, Petrov Y.V.¹,
P'nitsky D.K.², Migdal K.P.²**

¹ *Landau Institute for Theoretical Physics of Russian Academy of Sciences,
Russia, Chernogolovka, 142432, Moscow region*

² *All-Russia Research Institute of Automatics, SC "Rosatom", Russia, Moscow, 127055*

³ *Joint Institute for High Temperature of Russian Academy of Sciences, Russia, Moscow, 125412*

Femtosecond laser irradiation of sufficient energy creates various structures on the surface of the irradiated target, which find important technological applications. In the paper the influence of geometrical parameters (laser beam radius and the film thickness) and the energy absorbed by the target on the morphology of the surface structures is investigated. Two cases are studied. In the first case, the film is thick (bulk target), and the laser beam radius is much greater than the wavelength of optical radiation. In the second case, on the contrary, the film is thin and the beam radius is also small – of the order of light wavelength. In the first case a thin shell (spalled layer) is separated from the target and flies with approximately constant speed away from the target surface. In the work results of calculations of the dynamics of the shell motion are presented. On the surface of the target the nanorelief remains, which is formed due to mechanical foaming of the molten metal layer, capillary decay of the expanding foam and

freezing of flying remnants of the destroyed foam directly in the process of their movement. Effects related to the surface tension of the hot molten metals are significant to a great extent in the second case too. Because of strongly focused laser pulse an irradiated spot on the film melts, swells and solidifies in the form of cupola, which may be sharp at the top.

1. Введение

Лазеры с ультракоротким импульсом имеют широкий круг приложений в научных исследованиях и промышленности. Длительность такого импульса от единиц фемтосекунд ($1 \text{ фс} = 10^{-15} \text{ с}$) до единиц пикосекунд ($1 \text{ пс} = 10^{-12} \text{ с}$). В технологических приложениях, направленных на изменение поверхностных характеристик материала, вложения энергии в мишень умеренные, порядка $0.1 \div 10 \text{ Дж/см}^2$. Разумеется, для развития приложений требуется понимание процессов, вызванных ультракоротким воздействием. Первый крупный шаг в этом направлении был связан с пионерской работой [1], которой в этом году исполнилось сорок лет. Эта теоретическая работа предсказала возникновение двухтемпературных состояний, связанных с воздействием ультракоротких импульсов. Прошло двадцать лет после выхода в свет работы [1], фемтосекундные лазеры стали широко применяться в исследованиях и технологиях и выяснилось значение двухтемпературной физики [2–6].

Важнейшим этапом развития экспериментальной техники стала разработка исключительно высокоскоростной методики оптических измерений. Методика основана на синхронизации греющего (pump) и диагностического (probe) ультракоротких импульсов и высокоточном контроле зазора по времени (время задержки, delay time) между ними [2–4] (pump-probe методики). В результате удается следить за развитием процессов, инициированных фемтосекундным воздействием, с временным разрешением порядка десятков фемтосекунд ($10^{-14} \div 10^{-13} \text{ с}$). Отлично иллюстрирует разницу в разрешении во времени, сравнение с самыми передовыми техниками измерений ударно-волновых процессов VISAR (Velocity Interferometer System for Any Reflector) и ORVIS (Optically Recording Velocity Interferometer System), которые в наилучшем исполнении следят за развитием явления с шагом в десятки наносекунд 10^{-8} с (разница в пять порядков!).

Между тем, техники VISAR и ORVIS сыграли ключевую роль в изучении физики ударных волн в конденсированных средах. Именно с их помощью были изучены упруго-пластические ударные волны и явления откольного разрушения [7,8] на пространственно-временных масштабах порядка долей миллиметра и долей микросекунды. Новый шаг в физике ударных волн был связан с применением численного моделирования лазерной абляции и pump-probe методик диагностики [9–11]. Удалось обнаружить существование ультракоротких ударных волн, порожденных фемтосекундным воздействием, и сверхупругих состояний вещества, в которых прочность материалов вплотную приближается к атомному пределу прочности [9–11].

Удалось также предсказать существование нового режима распространения упруго-пластических ударных волн, в котором упругий и пластический скачки постоянно находятся на фиксированном расстоянии друг от друга [12]. В новом режиме упругий и пластический скачки движутся с единой скоростью и, следовательно, образуют одну волну. Ранее был известен упругопластический режим, в котором упругая и пластическая ударные волны расходятся со временем, поскольку скорость упругого скачка превышает скорость пластического скачка.

Данная работа посвящена анализу процессов на фронтальной стороне мишени, которая подвергается лазерному воздействию. Впервые вопрос о том, как же протекает фемтосекундная абляция, возник в связи с экспериментальными наблюдениями интерференционных колец Ньютона, к тому же меняющихся во времени [4]. Кроме того, в этой же работе [4] впервые было предложено применять уравнение термодинамического состояния вещества при расчетах ультракороткого воздействия. Эта идея была подхвачена, и далее стала основой такого рода вычислений и интерпретаций результатов опытов и моделирования [5, 6, 10–20].

Загадка с переменными кольцами Ньютона была решена в работах [5,6]. Именно тогда было понято, что лазерный факел ультракороткого воздействия принципиально отличается от лазерного факела, который формируется при облучении наносекундным импульсом. Оказалось, что картина с кольцами Ньютона четко указывает на откольный отрыв куполообразной оболочки, см. двумерные расчетные интерферограммы с кольцами в работе [21] и имеющиеся там ссылки. Получается, что летящая откольная оболочка составлена из вещества, которое находится в конденсированном состоянии (!). И так, впереди летит оболочка из конденсированной фазы (обычно горячий расплав металла или полупроводника), а полость купола наполнена разлетающейся парожидкостной смесью. Тогда как при наносекундном воздействии картина обратная. Наносекундный лазер формирует газовую или плазменную корону, в которой плотность вещества монотонно спадает к краю короны. Такое различие вызвано сильнейшими механическими эффектами, возникающими внутри конденсированной фазы при ультракоротком воздействии (термомеханическая абляция) [5, 6, 10–21].

В настоящей работе сравнивается геометрия разлета в случае больших и малых пятен лазерного нагрева (рис.1). Как правило, в металлах и полупроводниках порог плавления ниже, чем порог абляции [16, 22, 23]. Поэтому, во-первых, для отрыва откольной оболочки требуется больше энергии, чем для плавления и, во-вторых, оторвавшаяся оболочка находится в жидком состоянии. В динамике нуклеации в механически растянутом расплаве и при движении жидких пленок большую роль играют капиллярные эффекты. Расчеты показывают, что эти эффекты определяют процессы формирования и распада вспененных слоев металлов и полупроводников в случае больших пятен и процессы отрыва пленок от подложки в случае пятен малого размера. Перейдем к анализу геометрических и капиллярных эффектов.

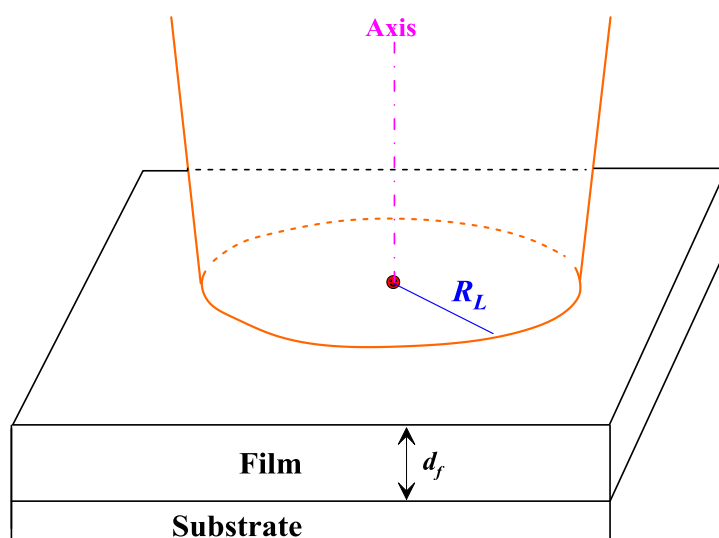


Рис.1. Определение геометрических параметров: радиуса пятна нагрева R_L на поверхности мишени и толщины пленки d_f . Показана ось лазерного пучка и подложка, на которую нанесена пленка

2. Большие пятна, объемная мишень

2.1. Расчет типичного опыта.

Рассмотрим воздействие лазера с длиной волны $\lambda = 800$ нм (титан-сапфир) на объемную мишень из золота в случае больших пятен $R_L \gg \lambda$. Здесь термин «объемный» означает, что толщина пленки d_f существенно больше, чем глубина слоя прогрева d_T , которая со-

ставляет примерно 130 нм для золота (см. рис.1). Длительность импульса $\tau_L = 70$ фс. Это типичная постановка эксперимента с значениями параметров в диапазонах: $\lambda = 400 \div 1300$ нм, $R_L = 10 \div 100$ мкм и $\tau_L = 10 \div 1000$ фс. Результаты расчетов показаны на рис.2–3. Если импульс существенно короче времени двухтемпературной релаксации (для золота релаксация длится $10 \div 15$ пс), и мы оперируем с поглощенной энергией F_{abs} , то решение слабо зависит от длительности импульса и длины волны. Главным параметром оказывается значение F_{abs} . Последующие диагностические импульсы отражаются от откольной оболочки, она летит слева впереди, и правого края слоя пены на рис.2. Отраженные волны интерферируют. Так складывается картина с интерференционными кольцами Ньютона [5, 6]. Обсудим методы, которые использованы при построении решений, показанных на рис.2–3.

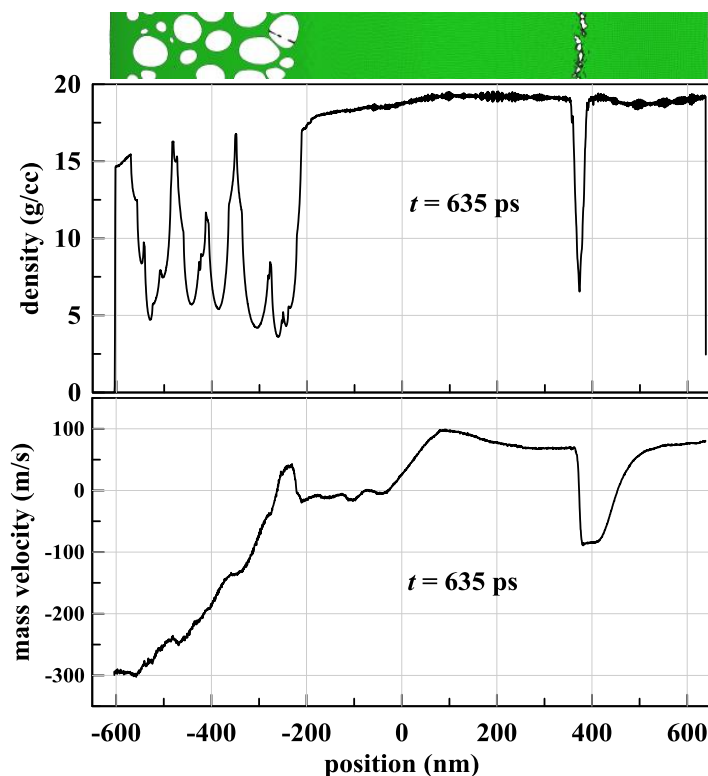


Рис.2. Сложное течение, которое возникает при воздействии ультракороткого импульса на пленку золота толщиной 1 мкм. Импульс падает слева, поглощенная энергия $F_{abs} = 0.193$ Дж/см². И левая, и правая границы пленки граничат с вакуумом. Верхняя панель: двумерная карта плотности. Виден двухфазный слой пар-жидкость (вспененный слой), возникающий вследствие кавитации в области слева. Справа происходит откол в твердой фазе. На средней панели показан профиль плотности. На нижней панели приведен профиль скорости. Видим, что в показанный момент времени, левая граница летит налево со скоростью 300 м/с, сравните со следующим рисунком

2.2. Методика расчета

В разработанном нами подходе, см., например, [18], численное моделирование осуществляется комбинированным методом. При этом двухтемпературная стадия описывается с помощью одномерного двухтемпературного гидродинамического кода (2Т-ГД). Система двухтемпературных гидродинамических уравнений приведена в [24], раздел 7. Одномерный подход применим, поскольку поперечные размеры объекта намного превышают обратные градиенты переменных по направлению по нормали к поверхности мишени, $R_L \gg \lambda \gg d_T$, (см. рис.1). По окончании двухтемпературной стадии в работу включается молекулярно-динамический (МД) код. Наш подход позволяет учесть весь спектр двухтемпературных явлений (через 2Т-ГД) вместе с тонкими процессами упругопластической релаксации, нук-

леации несплошностей и откольного разрушения как в жидкой фазе (кавитация), так и в твердой фазе (откол). Все эти тонкие кинетические процессы (пластическая релаксация, нуклеация) описываются с помощью МД.

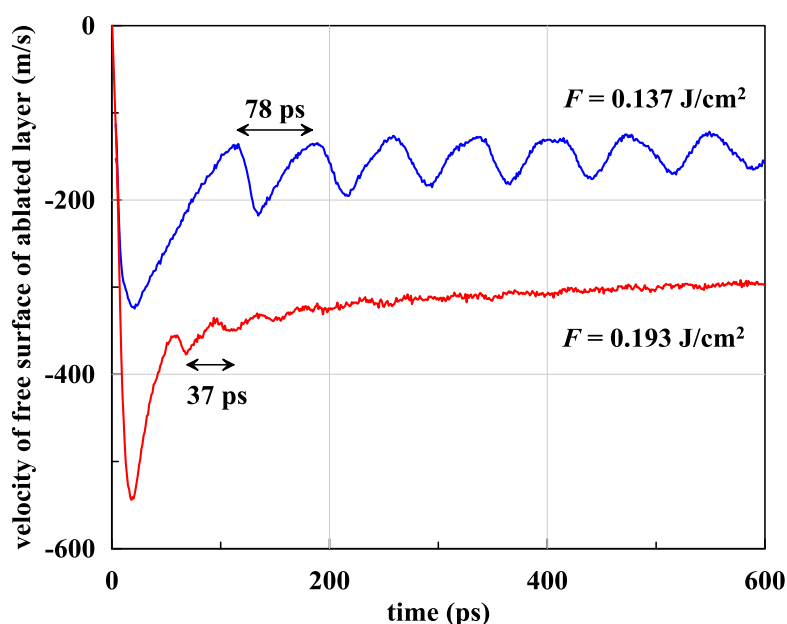


Рис. 3. Скорость левой границы откольного слоя как функция времени. Откольный слой хорошо виден на карте и профиле плотности на рис. 2. Это крайний слева слой. После резкого подъема скорости разлета происходит торможение откольного слоя из-за действия сил сопротивления растяжению. Важно, что это торможение продолжается и после нуклеации пузырьков в растянутом расплаве. Это связано с поверхностным натяжением во вспененном слое. Хотя, разумеется, амплитуда силы торможения в пене намного меньше, чем в сплошной среде. Ясно видны акустические осцилляции в откольном слое. Акустический импеданс пены близок к нулю, поэтому отражения осцилляций и от границы откольного слоя с пеной, и от границы с вакуумом происходят практически без потерь. С ростом поглощенной энергии (цифры Дж/см² на рисунке) толщина откольного слоя уменьшается. Соответственно частота осцилляций возрастает

В другом подходе [17, 25, 26] двухтемпературная стадия сочетается с МД прямо внутри МД кода (этот подход называется авторами ТТМ-МД, two-temperature model and molecular dynamics). Для этого двухтемпературные уравнения решаются на разностной сетке (разбиение на бины). Потoki тепла, которые переходят из электронной подсистемы в ионную подсистему, моделируются посредством малых приращений кинетической энергии атомов, находящихся внутри бина. Мощность на единицу объема этих приращений переменна во времени и неоднородна по разбиению на бины. Она определяется из разностного решения двух тепловых уравнений. В тепловое уравнение для электронов включено действие электронной теплопроводности. Итак, разностные уравнения определяют плотность (на единицу объема) мощности потока энергии в ионную подсистему. При этом из МД уравнений находятся (усреднением по бину) концентрация ионов и ионная температура внутри каждого бина. Концентрация и температура необходимы в разностной системе ТТМ для вычисления коэффициента теплопроводности и определения потока тепла из электронов в ионы. В этом состоит процедура совместного решения разностных уравнений ТТМ вместе с МД уравнениями движения каждого атома.

Подход ТТМ-МД в своей двухтемпературной части учитывает три из четырех существенных двухтемпературных факторов. К этой тройке относятся (I) поглощение лазерной энергии электронной подсистемой, (II) электрон-ионный обмен теплом и (III) электронная теплопроводность.

2.3. Электронное давление

Однако наш подход учитывает также четвертый фактор, связанный с электронным давлением p_e . Оно оказывается весьма существенным на двухтемпературной стадии. Тогда как в ТТМ-МД роль электронного давления не учтена.

Отметим еще один подход, в котором сделана попытка учесть эффекты, связанные с давлением p_e , совместно с решением МД уравнений движения ионов [27–30]. Назовем его (ТТМ+ p_e)/МД. В (ТТМ+ p_e)/МД [27–30] принимается в расчет не само электронное давление p_e , а его градиент ∇p_e , который авторы почему-то называют «взрывной силой» («blast force»). Они считают, что взрывная сила вызывает взрывную волну (blast wave). Непонятно, почему авторы применяют такие термины. На самом деле в случае объемной мишени имеются хорошо изученные в гидродинамике тепловая волна, волна сжатия и волна разрежения, бегущие от облученной границы с вакуумом. Специфика их заключается в том, что они распространяются в среде, которая подчиняется двухтемпературному уравнению термодинамического состояния, см., например, [24]. Такое уравнение состояния зависит от трех параметров ρ, T_e, T_i , а не от двух ρ, T , как в обычном одностепенном уравнении состояния. При этом за время двухтемпературной релаксации происходит переход от двухтемпературного к одностепенному уравнению состояния. Кстати, такой переход вызывает изменение параметра Грюнайзена, что сказывается на профилях волн.

В [27–30] используется разумная, стандартно применяемая аппроксимация электронной составляющей в термодинамике, которая при низких электронных температурах переходит в фермиевские формулы, а при высоких выходит на классический предел (снятие вырождения). Соответственно при низких температурах имеем

$$p_e = \gamma T_e^2 / 3, \quad E_e = \gamma T_e^2 / 2, \quad c_e = dE_e / dT_e = \gamma T_e, \quad \Gamma_e = 2/3, \quad \nabla p_e = 2/3 \gamma \nabla T_e,$$

где γ – считается постоянной; T_e – электронная температура; E_e – электронная энергия; c_e – электронная теплоемкость; Γ_e – электронный параметр Грюнайзена. При решении уравнения теплового баланса накладывается граничное условие. Граница с вакуумом считается теплоизолированной. Поэтому на этой границе градиент электронной температуры приравнивается нулю [27–30]. Следовательно, на этой границе обращается в нуль и «взрывная сила», см. рис.3 в статье [29].

Впервые о роли электронного давления было написано в важной работе [31], в которой был приведен расчет p_e , но гидродинамика расширения не рассматривалась, были сделаны оценки. Работа [31] подвела базу под гидродинамическое описание двухтемпературной стадии. Этой базой было описание процессов на микроскопическом уровне. В [31] было подчеркнуто, что в условиях опытов с ультракороткими лазерными импульсами динамические эффекты, связанные с давлением p_e , могут быть весьма существенны.

Обсудим работы [27–30]. В них предпринята попытка решения трудной задачи, попытка создания гибридного кода (ТТМ+ p_e)/МД, который разностным образом учитывал бы динамическое влияние электронного давления p_e внутри МД моделирования. Имеются два пути учета давления p_e при решении МД уравнений, описывающих траекторию каждого атома. См. работы [32–39]. На одном пути с помощью теории функционала плотности находят значения энергии и давления системы в двухтемпературных состояниях [32,33,36–39]. Затем, используя полученные данные, создают межатомный потенциал $U(r_{ij}, T_e)$, который учитывает влияние электронной температуры на характеристики межатомного взаимодействия [32, 33, 36–39]. Далее решают МД уравнения

$$m\ddot{r}_i = 1 + 2 = - \sum_{j \neq i}^N \partial U(r_{ij}, T_e) / \partial r_{ij} - \xi m v_i^T$$

На втором пути [27–30] пытаются включить эффекты p_e в МД уравнения:

$$m\ddot{i} = 1 + 2 + 3 = - \sum_{j \neq i}^N \partial U(r_{ij}) / \partial r_{ij} - \xi m v_i^T + B V_c / N_V \quad (1)$$

Это уравнение (11) из статьи [29]; индекс пробегает атомы от 1 до N . Слагаемое 1 представляет силу межатомного взаимодействия, которая вычисляется по потенциалу U , в котором *не учитывается электронная температура*. Слагаемое 2 – это нагрев ионов электронами. Скорость v_i^T это тепловая скорость атомов, т.е. скорость, которая получается вычитанием гидродинамической скорости бина. Индекс « T » сверху подчеркивает, что это тепловая скорость. Слагаемое 3 учитывает динамический эффект, связанный с градиентом электронного давления. Оно записано в виде

$$B = (2/3) \nabla [C_e(T_e) T_e], \quad C_e = C_{e0} T_e, \quad T_e < T_F / \pi^2.$$

Эти выражения взяты из [29], формулы (10) и (14). Здесь C_{e0} постоянная величина, см. таблицу 1 в [29]; следовательно, C_{e0} не зависит ни от электронной температуры, ни от плотности вещества. Отметим, что величина B в формуле (10) из [29] равна удвоенному (!) градиенту электронного давления p_e . Видимо, это ошибка авторов [29]. Действительно, в приближении Ферми–газа, электронное давление p_e связано с электронной тепловой энергией E_e формулой $p_e = (2/3) E_e$, где E_e внутренняя энергия свободных электронов на единицу объема; $2/3$ – параметр Грюнрайзена электронного газа. При малых температурах $T_e \ll T_F$ энергия E_e равна $E_e = C_{e0} T_e^2 / 2$. Соответственно $p_e = C_{e0} T_e^2 / 3$ и $\nabla p_e = (1/3) C_{e0} \nabla (T_e^2)$.

В потенциал U в системе уравнений $m\ddot{i} = 1 + 2 + 3$ (1) не включена зависимость от электронной температуры. Таких потенциалов много, поэтому второй путь проще, чем первый путь. Однако здесь имеется трудное место, связанное с правильной постановкой задачи. Требуется сопрячь гидродинамическую постановку с разностным разбиением давления p_e с одной стороны и МД уравнения, записанные отдельно для каждого индивидуального атома, с другой стороны. При разностной постановке, давление задается на цепочке бинов – малых, но конечных интервалов, на которые разбивается отрезок интегрирования.

В гидродинамической постановке на границе с вакуумом $|_v$ записывают граничное условие, которое требует равенства нулю *полного* давления

$$p = p_e + p_i, \quad p|_v = 0 \quad (2)$$

на границе, поскольку именно полное давление (сумма электронного и ионного давлений) движет атомы в гидродинамике при соблюдении условия электронейтральности. Отметим, что здесь мы пренебрегаем давлением пара. Условие (2) следует из известного гидродинамического условия непрерывности давления. На границе с вакуумом имеет конечное значение электронная температура. Значит, электронное давление на границе имеет конечное значение $p_e|_v > 0$.

Отсюда следует, что при правильной постановке, давление в ионной подсистеме на границе с вакуумом должно быть конечным и отрицательным. Сказанное относится к двухтемпературной стадии, когда вклад электронного давления существен. На однотемпературной стадии при не слишком высоких температурах, ограниченных значением в несколько тысяч градусов, электронным вкладом можно пренебречь из-за малости теплоемкости вырощенных электронов при $T \ll T_F$. Тогда на однотемпературной стадии начинает выполняться условие

$$p|_v = 0, \quad p = p_e + p_i \approx p_i, \quad \Rightarrow p_i|_v \approx 0.$$

Как сказано, на двухтемпературной стадии $p_i|_v < 0$, значит, ионная подсистема на вакуумной границе на этой стадии должна находиться в *растянутом* состоянии по отношению к равновесному состоянию при данной ионной температуре.

Причем в это растянутое состояние крайняя частица переходит с началом действия ультракороткого лазерного импульса. Если лазерный нагрев электронов начинается очень резко, то на ранней двухтемпературной стадии исходный (т.е. до начала воздействия) скачок плотности на границе трансформируется в автомодельную волну разрежения, в которой динамика расширения определяется электронным давлением. Такая волна со стороны вакуума имеет участок однородного течения, на котором плотность постоянна (плато). Вещество на плато находится в растянутом состоянии по отношению к равновесному состоянию при данной ионной температуре. Волна разрежения с плато в одностепенном состоянии проанализирована в работе Иногамов и др., ЖЭТФ, 1999, Т.115, №6, С.2091–2105. Волна разрежения в конденсированной среде в одно- и двухтемпературном случаях состоит из трех участков. Это участки, считая от границы с вакуумом, суть: (I) плато, (II) переходной участок и (III) невозмущенный участок. Участки (II) и (III) разделены головной характеристикой, которая стартует с вакуумной границы в момент резкого начала лазерного импульса. На участке (III) двухтемпературной волны разрежения, вещество имеет исходную плотность, а в давлении доминирует p_e . Ширина участка порядка толщины скин-слоя.

Участок (II) покрыт веером характеристик, бегущих в толщу мишени. На этом участке положительное давление p_e постепенно (в направлении к вакууму) несколько уменьшается, а давление p_i становится отрицательным и растет по абсолютной величине из-за растяжения вещества и снижения плотности. На участке (II) вещество набирает скорость под действием градиента полного давления $p = p_e + p_i$, которое обращается в нуль на границе между участками (I) и (II). На плато (I) все материальные частицы двигаются с одинаковой скоростью, полное давление равно нулю. На плато в одностепенном случае вещество находится на бинодали фазовой диаграммы одностепенного уравнения термодинамического состояния. В двухтемпературном случае вещество находится на бинодали фазовой диаграммы двухтемпературного уравнения термодинамического состояния. На бинодали плотность вещества равна равновесной плотности, а полное давление равно нулю (давлением паров пренебрегаем).

В наших 2Т-ГД расчетах полное давление равно нулю на границе с вакуумом; условие (2). Пример расчета представлен на рис. 4. Подробно эти расчеты описаны в следующем разделе (раздел 3). На рис. 4 горизонтальная штриховая прямая соответствует уровню нулевого давления. Это давление в вакууме. Вакуум находится слева. Стрелки на рис.4 показывают граничные значения электронного и ионного давлений, отсчитанные от нулевого уровня. Как видим, на границе эти вклады в полное давление точно компенсируют друг друга. Таким образом, полное давление (синяя кривая на рис. 4) обращается в нуль на границе с вакуумом.

Профили на рис.4, полученные из расчета с помощью кода 2Т-ГД, имеют слева - направо участок плато (I), участок быстрого роста плотности и давлений p_i, p (II) и участок (III), незатронутый гидродинамическим возмущением, распространяющимся от границы с вакуумом. То, что на участке (I) параметры меняются, вызвано процессом передачи энергии из электронов в ионы.

В статье [29] выписано выражение (18), которое определяет то, что в этой статье называется просто (без конкретизации электронный, ионный или полный) стрессом (то есть давление, взятое с обратным знаком). Выражение (18) из [29] имеет вид

$$\sigma_{\alpha\beta} = -(1/V) \sum_{i=1}^{N_c} \left[v_{i\alpha} v_{i\beta} / m + 0.5 \sum_{j=1}^{N_i} r_{ij\alpha} f_{ij\beta} \right] \quad (3)$$

Греческие индексы пробегают пространственные направления 1,2,3, латинские – нумеруют атомы. В выражение входят потоки импульса, связанные с тепловым движением атомов. Вириал сил f не зависит от электронной температуры T_e , поскольку межатомный потенциал U в [29] не зависит от значений T_e . Тогда, как видим, (3) – это выражение для напряжений в атомной подсистеме, оно ничего «не знает» о двухтемпературности и горячих электронах.

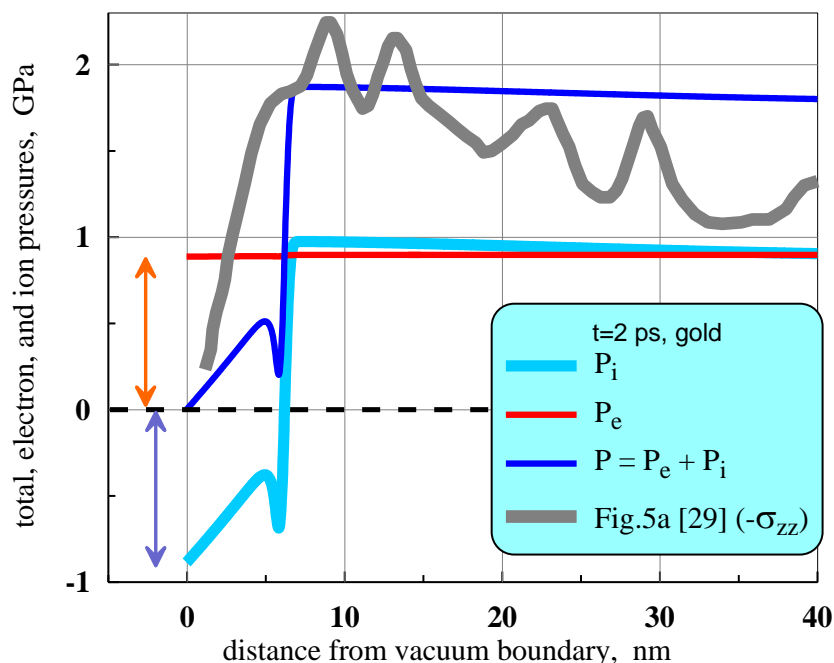


Рис.4. Распределение полного, электронного и ионного давлений из нашего расчета и напряжений, взятого с обратным знаком ($-\sigma_{zz}$) с рисунка 5(a) в [29]. Момент времени 2 пс. Время отсчитывается от момента прихода максимума греющего импульса на границу. Граница с вакуумом, подвергнутая облучению, находилась в точке $x=0$. В нашем расчете длительность импульса 100 фс, толщина золотой пленки 60 нм и вложенная энергия $F_{abs} = 10$ мДж/см². По плотности введенной в пленку энергии на единицу объема наш расчет соответствует расчету из статьи [29] с толщиной 100 нм и энергией $F_{abs} = 17.5$ мДж/см², см. рис.2–5 из [29]

В нашей терминологии выписанное выше напряжение σ_{zz} (18) из [29], если его взять с обратным знаком, есть *ионное* давление. Действительно, формула (18) [29] дает ионное давление (с точностью до знака), поскольку данное напряжение вычисляется по формуле (18) в [29] по ионным потокам импульса и силам взаимодействия между ионами. Как сказано, в формуле (18) из [29] нет никакого вклада от градиента электронной температуры.

Если буквально воспринимать формулы (10) (определение «взрывной силы»), (11) (уравнение, определяющее перемещение вещества), (18) (определение ионного давления) и рисунки 3 и 4 из [29], то получается, что «взрывная сила» действует *только вглубь* вещества. Таким образом, эта сила *только сжимает* вещество *вне малой окрестности границы с вакуумом*. В малой окрестности границы с вакуумом градиент 3 (слагаемое 3) в формуле (1) обращается в нуль. Это следует из условия теплоизолированности границы с вакуумом: отсутствие теплового потока через эту границу, $\nabla T_e|_v = 0$. Тогда из выражений (1) и (3) получаем, что в принятой в [29] модели на вакуумной границе $|_v$ обращается в нуль напряжение (3). Тогда как согласно (2) должно обращаться в нуль *полное* давление. Т.е. в 2Т-ГД имеем $p|_v = p_e|_v + p_i|_v = 0$ (2), а в модели [29] выполняется условие $p_i|_v = 0$.

Следовательно, в модели [29] плотность вещества на границе равна равновесной при температуре $T_i|_v$ – эффект дополнительного расширения вещества на границе вследствие

нагрева электронной подсистемы в этой модели не учитывается (нет перехода на двухтемпературную бинодаль). Получается, что в модели [29] вещество на границе с вакуумом даже на двухтемпературной стадии находится на одготемпературной бинодали.

В модели [29] на ранней двухтемпературной стадии, пока ионная температура T_i изменилась мало по сравнению с начальным значением, плотность вещества на границе равна начальному значению плотности. То есть плотность вещества на границе равна плотности вещества до ультракороткого лазерного воздействия. На некотором расстоянии от границы градиент электронного давления сжимает вещество. При этом на ранней стадии влияние контргradientа давления p_i еще мало. Тогда в модели [29] на ранней стадии граница с вакуумом движется не в сторону, откуда пришел лазерный луч, а в сторону распространения луча!

Только по окончании двухтемпературной стадии, когда градиент электронного давления становится несущественным, знак скорости вакуумной границы в модели [29] становится правильным – начинается расширение вещества в сторону вакуума.

Спрашивается, можно ли поправить модель [29] так, чтобы выполнялось корректное граничное условие (2) на границе с вакуумом? Как это сделать? Шаг по времени мал по сравнению с длительностью лазерного импульса. После начала лазерного импульса каждый шаг по времени добавляет энергию в электронную подсистему в цепочке приповерхностных бинов, покрывающей скин-слой. Плотность вещества в нескольких крайних ячейках больше, чем та, которая требуется, чтобы понизить полное давление до нуля и удовлетворить граничное условие (2) в крайнем бине. Как создать условия для расширения крайних бинов?

Предлагается следующее. Нужно четко знать текущее положение границы конденсированной фазы $x|_v(t)$. Толщина переходной зоны между конденсированной фазой и вакуумом порядка межатомного расстояния. Размер бина Δx намного больше межатомного расстояния. Пусть бин, который начинается в точке $x|_v(t)$ и продолжается на расстояние Δx в толщу среды, имеет номер 1. Пристраиваем дополнительный бин Δx с наружной стороны границы с вакуумом. Даем ему номер 0. Градиент 3 (слагаемое 3) в уравнении (1) вычисляется по разности электронных давлений p_e в средних точках бинов. В бине номер 1 вычисляем градиент 3 по разности давлений p_e в 1-м и 0-м бинах. При этом давление p_e в 0-м бине полагаем равным нулю (электронов в вакууме нет).

При таком подходе разность давлений p_e в 1-м и 0-м бинах растягивает вещество до равновесной плотности $\rho_{eq}(T_i, T_e \geq T_i)$, которая соответствует текущим значениям электронной и ионной температур (двухтемпературная бинодаль). Тогда как в модели [29] крайний бин имел равновесную плотность по ионной температуре (одготемпературная бинодаль)

$$\rho_{eq}(T_i, T_e = T_i), \quad \rho_{eq}(T_i, T_e = T_i) > \rho_{eq}(T_i, T_e > T_i).$$

Равновесной называем такую плотность, при которой полное давление $p = p_i + p_e$ равно нулю (влиянием давления пара на динамику пренебрегаем). При этом мы говорим об интервале энергий, в котором после электрон-ионной релаксации ионная температура ограничена значениями порядка нескольких тысяч градусов. Существенно, что эти температуры намного меньше энергии Ферми. Поэтому после электрон-ионной релаксации до этих температур электронный вклад в полную энергию и полное давление становится мал по сравнению с ионным вкладом: $p = p_i + p_e \approx p_i$.

С течением времени электронная температура $T_e|_v$ на границе с вакуумом уменьшается (знак $|_v$ означает принадлежность к границе). Соответственно уменьшается и электронное давление на этой границе $p_e|_v = \gamma T_e^2|_v/3$. Поэтому сравнение расчета, показанного на

рис.4, с данными из статьи [29] необходимо проводить на возможно более раннем моменте времени, пока электронный вклад еще велик. Это нужно для того, чтобы понять, какое давление (полное или ионное) показано на рис. 5 статьи [29].

К сожалению, наиболее ранний момент, приводимый в статье [29], это момент 2 пс. Профиль давления ($-\sigma_{zz}$) на этот момент на рис. 5а из [29] похож на профиль полного давления в нашем 2Т-ГД расчете, см. сравнение расчетов на рис. 4 выше. Но тогда обозначение σ_{zz} в [29] не соответствует формуле (18) в [29]. Отметим, что в статье [29] величина σ_{zz} на момент 2 пс быстрее (по модулю) убывает к правой границе, чем на нашем рис. 4. Непонятно, с чем это связано. Электронная теплопроводность почти выравнивает распределение электронной температуры по пленке за 2 пс. Соответственно выравнивается и распределение электронного давления, см. рис. 4. В то же время волна разрежения от правой границы пленки с вакуумом к 2 пс продвинулась в толщу пленки на малое расстояние, примерно на 6 нм. Эта волна справа не видна на рис. 4, поскольку на рис. 4 показана окрестность левой границы с вакуумом. Такое же расстояние прошла волна разрежения, бегущая слева, см. рис. 4. Резкий спад при $x \approx 6$ нм на рис. 4 указывает на положение головной характеристики волны разрежения. Возможно, более быстрое убывание давления в толщу пленки в расчете [29] на рис. 4 связано с использованием устаревшей модели (формула 12 в [29]) для двухтемпературной теплопроводности, которая в несколько раз занижает теплопроводность, см. Петров и др. Письма ЖЭТФ, 2013, Т.97, С.24.

В работах [32–34] обсуждаются новые эффекты, связанные с учетом электронного давления. Приводятся данные по трехмерной ρ, T_e, T_i фазовой диаграмме двухтемпературного уравнения состояния, обсуждается, могут ли существовать упругие состояния в двухтемпературном кристалле [34] и изучается влияние электронного давления на волну разрежения [32, 33]. Скажем несколько слов о двухтемпературных волнах разрежения. Как говорилось выше, см. также рис. 4, на облученной греющим импульсом границе с вакуумом отрицательное ионное давление компенсирует положительное электронное давление (стрелки на рис. 4). Электронное давление $p_e = \gamma T_e^2 / 3$ растет с температурой T_e . Для золота параметр γ равен $\gamma \approx 71$ Дж/м³/К². Минимальное давление на холодной кривой золота равно примерно -20 ГПа, см. рис.2 в статье [23].

Записывая $-20 \text{ ГПа} = \gamma (T_e^{frag})^2 / 3$, находим, что температура T_e^{frag} , выше которой начнется холодное разрушение кристалла из-за его растяжения электронным давлением, равна 29 кК. Зависимость электронной энергии $E_e(\rho, T_e, T_i = 0)$ от плотности и электронной температуры по данным квантово-механических расчетов методом функционала плотности приведена в работе [35]. Оценим поглощенный флюенс F_{abs} , необходимый для достижения температуры T_e^{frag} . Запишем тепловой баланс

$$F_{abs}/d_f = E_e(\rho = \rho_o, T_e^{frag}, T_i = 0)$$

для пленки толщиной d_f . Значение $E_e(\rho = \rho_o, T_e^{frag} = 29 \text{ кК}; T_i = 0)$ равно 61 ГПа. Отсюда $F_{abs} = 0.6$ Дж/см² для пленки толщиной $d_f = 100$ нм. Этот флюенс в несколько раз превышает порог абляции. Соответственно на одготемпературной стадии вещество будет сильно механически фрагментировано и частично испарено. Но на краю облака фрагментации могут находиться фрагменты, которые получились холодным разрушением решетки на ранней двухтемпературной стадии вследствие растяжения кристалла электронным давлением. Именно о такого рода «холодном» разрушении говорилось в работе [31].

Численная демонстрация существования холодного разрушения приведена в работах [32, 33]. Сравнение одготемпературной и двухтемпературной бинодалей показано на рис.2 из статьи [33]. Разлет газа атомов с возбужденными электронами представлен на рис.3 [33]. Преодоление энергии когезии и газовый разлет имеют место в условиях, когда электронное

давление превышает прочность вещества [32, 33]. При этом электронная температура в облаке газового разлета остается конечной. Межатомное взаимодействие быстро слабеет по мере разлета и увеличения межатомных расстояний. Все атомы вылетают в возбужденных состояниях. Вопрос о дальнейшей эволюции облака такого состава требует дополнительных исследований. Интересно, что вследствие упруго-пластического перехода внутри волны разрежения, имеет место существенный нагрев ионной подсистемы, хотя в [32, 33] электрон-ионный теплообмен отключен. Нагрев происходит в зоне упруго-пластического перехода. Как говорилось, в [32, 33] волна разрежения формируется под действием электронного давления.

Имеется еще одна группа работ [36–39], в которой предложена методика внесения динамических электронных эффектов в потенциал межатомного взаимодействия (первый путь в классификации из двух путей выше). Сначала проводятся расчеты методом функционала плотности металлов с возбужденной электронной подсистемой, затем данные этих расчетов аппроксимируются методом погруженного атома (embedded atom model, EAM) в виде межатомного EAM потенциала. Наконец проводятся МД расчеты воздействия ультракороткого импульса с использованием этого EAM потенциала, зависящего от электронной температуры [36–39].

3. Малые пятна, отрыв пленки от подложки и формирование купола

В разделе 2 был рассмотрен случай большого пятна $R_L \gg \lambda \gg d_T$ и толстой пленки $d_f \gg d_T$. В этом случае выше порога абляции происходит массовая нуклеация в достаточно протяженном (по направлению нормали к поверхности) слое внутри слоя расплава [6,17,21,32,40]. По мере геометрического растяжения слоя нуклеации и роста объемной доли паровой фазы происходит трансформация пузырьковой жидкости в пену с малым содержанием расплава. Дальнейшее растяжение приводит к механическому разрушению пены [32, 40]. Динамика разрыва жидких мембран описана в работе [40]. Анализ темпа разрушения мембран [32,40] приводит к выводу о капиллярном характере разрушения мембран, образующих стенки пузырей в пене. Скорости движения растягиваемых и разрушающихся мембран оказываются порядка $10 \div 100$ м/с, а характерные времена порядка $0.1 \div 1$ нс.

Расчеты [32, 40–43] показывают, что с примерно такой же скоростью на расплав, пузырьки в расплаве и жидкие мембраны напозаает фронт кристаллизации. Затвердевание расплава в случае толстых пленок происходит за счет теплоотвода в толщу пленки. Жидкость вблизи зоны рекристаллизации оказывается сильно переохлажденной (на сотни градусов относительно температуры плавления-кристаллизации) [32, 40–43]. В таких условиях увеличение скорости фронта рекристаллизации с увеличением градиента температуры насыщается на значениях, определяемых темпами диффузии в жидкой фазе [44, 45]. В МД расчетах [32,40–43] использована гибридная методика, в которой перенос тепла электронами в металлах моделируется с помощью блока Монте–Карло [46].

Таким образом, время разрушения нанопены и время ее рекристаллизации оказываются одного порядка. Именно поэтому особенности топологии поверхности в виде разорванных мембран не успевают сгладиться за счет поверхностного натяжения до заморозки этих особенностей поверхности. В результате формируется сложный хаотический нанорельеф облученной поверхности [32, 40]. Примеры, полученные в наших экспериментах, приведены в работах [32, 40]. При воздействии импульса с энергией около порога абляции в мишене остаются замороженные нанопузырьки [41–43,46]. Твердая фаза, сформированная в условиях быстрой рекристаллизации возле замороженных пузырьков и мембран, оказывается, состоит из мельчайших кристаллитов размерами в десятки нанометров. Схожие результаты получены недавно методом ТТМ–МД [47]. Постепенно представленная выше картина с хаотическими наноструктурами и кавитационно–капиллярно–рекристаллизационным механизмом их образования становится общепринятой. Она дополняет традиционную плазмонную

модель, справедливую при меньших флюенсах и большом количестве повторных лазерных воздействий в одну точку.

Итак, в разделе 2 рассмотрен случай: $R_L \gg \lambda \gg d_T$, $d_f \gg d_T$ – большое пятно, толстая мишень, см. рис. 1. Перейдем к ситуации с малым пятном $R_L \sim \lambda$ и тонкой пленкой $d_f < d_T$, где λ, d_T – длина волны излучения и толщина слоя прогрева. Эта ситуация представляет большой интерес в свете экспериментов [48–50]. В свою очередь опыты такого рода проводятся в рамках разработок устройств лазерного печатания LIFT, LIBT (laser induced forward/backward transfer), для создания покрытий поверхности для SERS (surface enhanced Raman scattering), для устройств метаоптики и наноплазмоники. Замороженные структуры, которые получаются при малом пятне облучения и тонкой пленке качественно отличаются от описанных выше замороженных хаотических нанопен.

На рис.5 представлена общая картина отслойки пленки от подложки и формирование куполообразного вздутия пленки. В экспериментах [48–50] используют пленку из золота толщиной $10 \div 100$ нм. Эта пленка напылена на толстую (много микрон) стеклянную подложку. Лазер освещает пленку либо через воздух сверху, как на рис.1, либо через стекло снизу, см. рис.5. Направление прихода греющего пучка малосущественно, поскольку из-за большой электронной теплопроводности золота на двухтемпературной стадии пленка однородно прогревается за время менее одной пикосекунды. Это время мало по сравнению с характерным акустическим временем $t_s = d_f/c_s \sim 10$ пс.

Процесс отрыва пленки от подложки допустимо рассмотреть в одномерной постановке, когда переменные зависят только от координаты z и времени t . Дело в том, что поперечный масштаб R_L (см. рис.1) порядка длины волны, т.е. порядка микрона, а масштаб по нормали z порядка толщины пленки, которая в 10 – 100 раз меньше. В процессе отрыва пленки формируется распределение скоростей $v(r)$, с которым пленка теряет динамический контакт с подложкой.

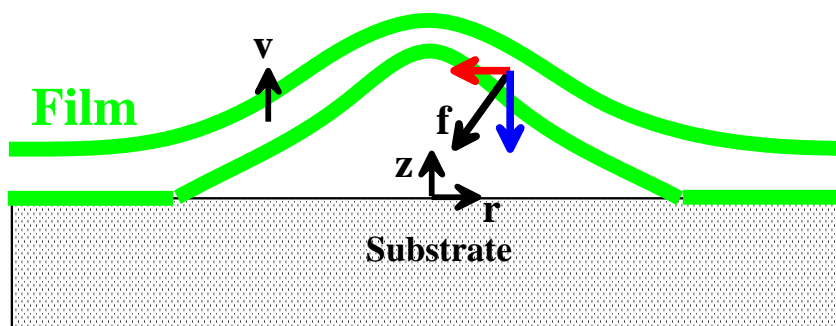


Рис. 5. Схема отслойки и вздутия пленки на подложке. Лазерный пучок, показанный на рис.1, нагревает и плавит металлическую пленку. Пучок симметричен в цилиндрической системе координат r, z . Численные расчеты, представленные в разделе 3.1, объясняют, как происходит плавление, набор скорости пленкой и ее отслойка от подложки

Распределение скорости формируется за времена порядка акустического масштаба времени $t_s \sim 10$ пс. Скорости v порядка $10 \div 100$ м/с. Поэтому образование купола с высотой порядка радиуса R_L происходит на больших (по сравнению с t_s) временах:

$$t_{cup} \sim R_L/v = (R_L/d_f)(1/M)t_s \gg t_s, \quad M = v/c_s.$$

Оба фактора в приведенной оценке велики, поэтому формирование купола затягивается на десятки наносекунд.

Остывание купола на диэлектрической подложке происходит в основном за счет переноса тепла электронной теплопроводностью вдоль пленки. Тепловые потери в плохо проводящую диэлектрическую подложку малы. Радиационными потерями можно пренебречь.

Простая оценка времени остывания и рекристаллизации нагретого пятна дает $t_{cool} \sim R_L^2/\chi \sim 10$ нс, где $R_L \sim 10^{-4}$ см; $\chi = \kappa/c \sim 1$ см²/с – коэффициент температуропроводности; κ, c – коэффициент теплопроводности и теплоемкость металла. Как видим, времена образования купола и его заморозки одного порядка. С этим связано формирование твердых куполов на облученной поверхности.

Время отрыва пленки на несколько порядков короче времени формирования купола. Поэтому эти задачи можно разделить. Такой подход намного упрощает вычисления. Ниже сначала с помощью двухтемпературного гидрочода 2Т-ГД моделируется процесс отрыва пленки (раздел 3.1). Затем с применением молекулярной динамики (МД) и блока Монте-Карло (МК) (МД-МК гибридный код) анализируется процесс формирования купола и его затвердевания (раздел 3.2). Динамика купола определяется амплитудой скоростей $v(r)$, капиллярными эффектами и темпом кристаллизации. При этом сила поверхностного натяжения f , показанная на рис.5, имеет две составляющие. Радиальная составляющая сгоняет вещество пленки в приосевую зону, а составляющая по координате z тормозит движение пленки и мешает ей улететь от подложки.

3.1. Осцилляции или отрыв пленки от стеклянной подложки

Рассмотрим динамику пленки, облученной ультракоротким импульсом, на подложке. Оказывается, в зависимости от вложенной в пленку энергии F_{abs} имеются три режима. Их разделяют два порога F_{delam} и F_{abl} . Ниже первого порога (порог деляминации) F_{delam} пленка остается на подложке. Величина этого порога определяется силой адгезии между стеклом и пленкой. Между порогами F_{delam} и F_{abl} пленка отслаивается от стекла. При этом она отслаивается как целое. Выше порога F_{abl} пленка разрывается. Причем разрыв пленки происходит до того как волна растягивающего напряжения доходит до контакта стекло-металл.

Задача об облучении свободновисящей пленки (пленка, которая имеет две границы с вакуумом) рассматривалась во многих работах [6,16,18, 23,51,52], начиная с работы [6]. В [18] анализировалось влияние толщины пленки. Нас интересуют тонкие пленки $d_f < d_T$, которые прогреваются практически однородно до начала существенного гидродинамического движения. Почему целесообразно вспомнить о разлете однородно прогретой свободновисящей пленки? Дело в том, что акустический импеданс золота намного больше акустического импеданса стекла [53]. Импеданс вакуума равен нулю. В этом смысле пленка золота на стекле похожа на свободновисящую пленку, но имеется небольшая асимметрия, связанная с малым импедансом стекла.

Свободновисящая пленка дает нам ясное представление о пороге абляции F_{abl} , на котором пленка разрывается пополам [6,16,18, 23,51,52]. При этом порог абляции F_{abl} чуть выше, чем в случае свободновисящей пленки, поскольку бегущая от контакта золото-стекло волна разрежения чуть слабее, чем в свободновисящем случае. Ослабление этой волны разрежения происходит потому, что имеется малый, но не нулевой, акустический импеданс стекла.

Между порогами F_{delam} и F_{abl} конечная скорость центра масс пленки, с которой она удаляется от стекла, возникает из-за асимметрии задачи. В симметричном случае скорость центра масс равна нулю. Из-за малости асимметрии скорость центра масс намного меньше (в отношении акустических импедансов раз, см. [53]), чем скорость, с которой осциллирует свободновисящая пленка равной толщины и при равном вложении энергии.

В данной статье впервые представлено полное численное решение задачи о нагреве пленки на подложке (в [53] было получено упрощенное аналитическое решение в акустическом приближении в режиме $F_{delam} < F_{abs} < F_{abl}$). Важно, что ниже описаны колебательный режим $F_{abs} < F_{delam}$ и режим с внутренним разрывом пленки $F_{abs} > F_{abl}$.

Колебательный режим. На рис.6–8 показаны затухающие осцилляции пленки золота, наблюдаемые при вложениях энергии ниже порога деляминации пленки от стекла:

$F_{abs} < F_{delam}$. Контакт с вакуумом находится слева. Мгновенное положение правого контакта золото-стекло легко определить по излому профиля давления, на котором испытывает скачок градиент давления. Появление скачка вызвано большой разностью плотностей стекла (2.23 г/см^3) и золота (19.3 г/см^3). Давление в стекле существенно меньше, чем давление в золоте, поскольку акустический импеданс стекла ($z_g = \rho_g c_g = 0.87 \times 10^6 \text{ г/см}^2/\text{с}$) мал по сравнению с акустическим импедансом золота ($z_{Au} = \rho_{Au} c_{Au} = 5.9 \times 10^6 \text{ г/см}^2/\text{с}$). Отношение импедансов золота к стеклу равно $q = 6.8$.

Возникновение движения, показанного на рис.6–8, связано с быстрым нагревом пленки. Время нагрева электронной подсистемы всей пленки составляет малую величину порядка одной пикосекунды. Это время мало по сравнению с акустическим масштабом $t_s = d_f / c_s$. Поэтому по существу имеет место «удар» по пленке. Фактически на границах пленки с вакуумом и со стеклом возникает ситуация с распадом скачка давления, поскольку давление в металле нарастает быстро, за 1 пс, а распад происходит на акустическом масштабе времени, который на порядок больше.

Соответственно колебания пленки, показанные на рис.7 и 8, далеки от синусоидальных колебаний. Они имеют острые углы, являющиеся следами быстрого нарастания давления на левой и правой границах пленки. Резкий подъем давления на рис. 8 в моменты времени $t = 0, 40, 80, 120$ пс и т.д. порождается быстрым нагревом левой границы (граница с вакуумом).

Причем на рис.8 показано давление на *правой* границе (границе со стеклом). Быстрота отклика (при $t \approx 0$) на *правой* границе на нагрев *левой* границы характеризует скорость распространения тепла по пленке.

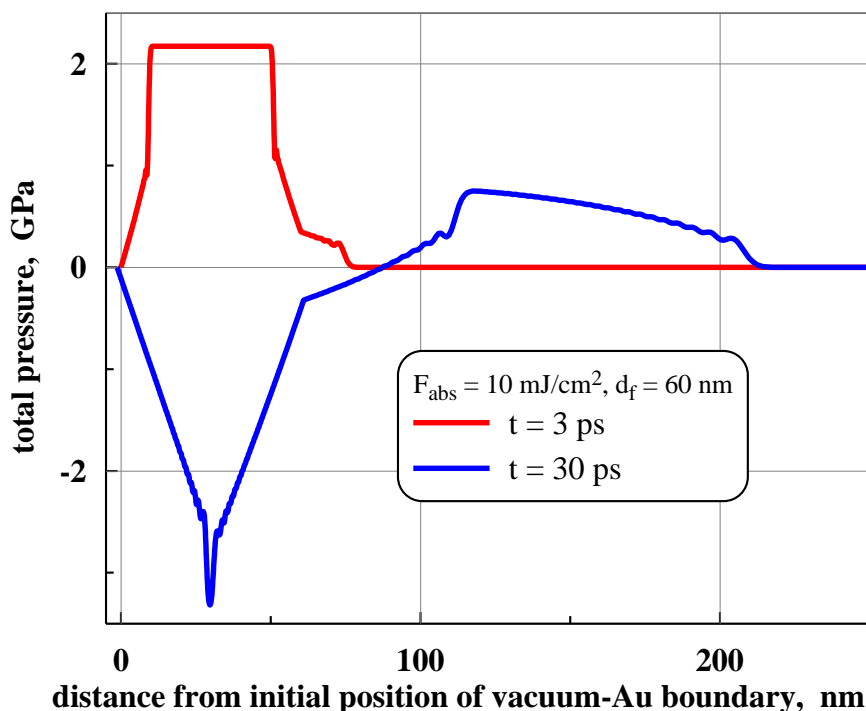


Рис. 6. Профили давления в пленке золота и в стекле. До прихода лазерного импульса пленке соответствовал интервал $0 < x < 60$ нм, а стекло располагалось правее точки 60 нм. На момент 3 пс в пленку бегут две волны разрежения, а в стекло распространяется ударная волна. К моменту 30 пс положительное давление в золоте сменяется на отрицательное. Положительное давление было создано быстрым нагревом пленки. Отрицательное давление вызвано растяжением золота

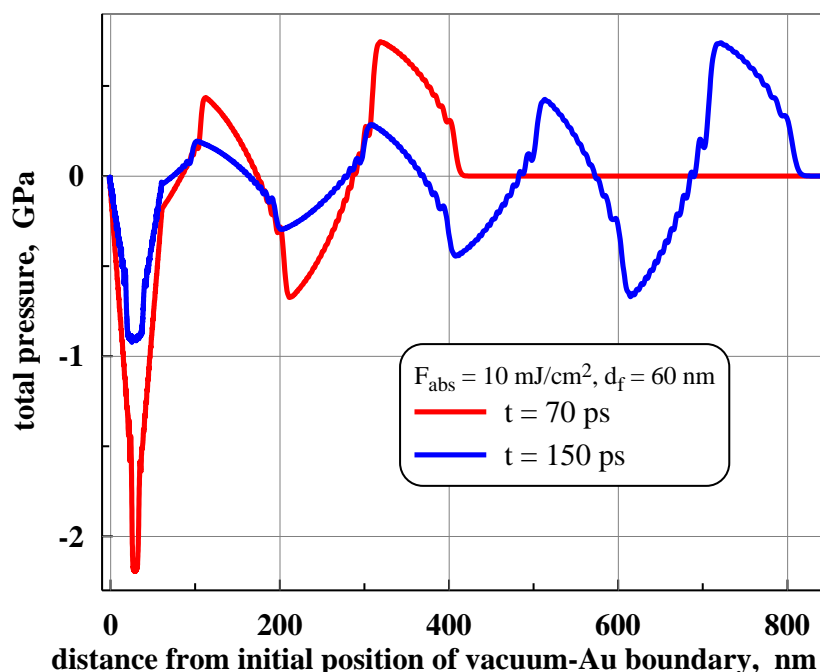


Рис.7. Осциллирующая пленка излучает акустические волны в стекло. Видно, как постепенно, колебание за колебанием, формируется цуг волн, уходящих в стекло. Постепенно амплитуда осцилляций уменьшается из-за потерь на излучение

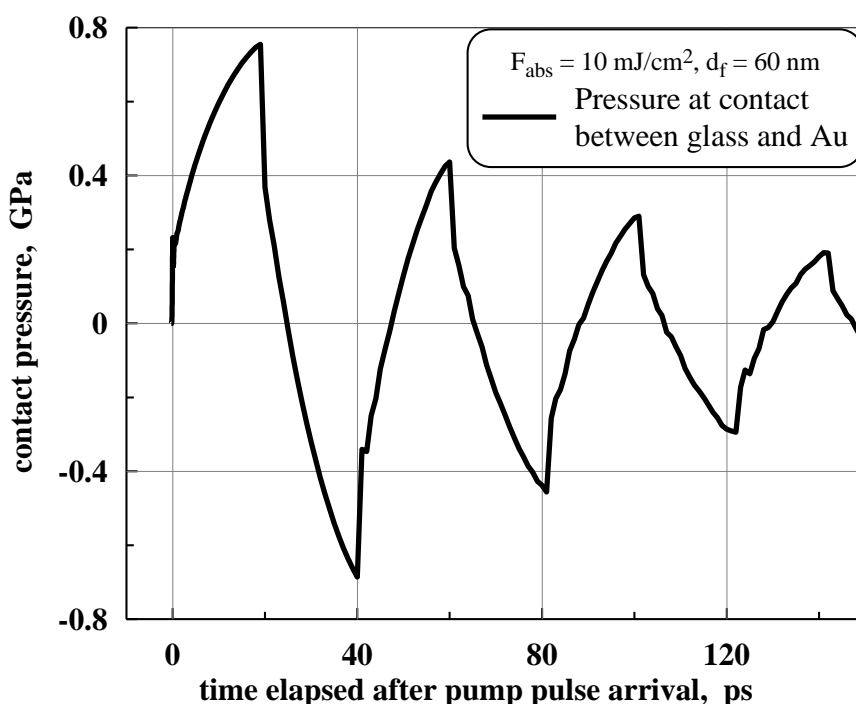


Рис. 8. Затухающие колебания давления на контакте между золотом и стеклом. Как видим, давления на контакте существенно меньше давлений в внутри пленки. Считаем, что сила когезии на контакте больше, чем растягивающие напряжения на контакте. Тогда поглощенный флюенс данного расчета меньше порога деламинации. С ростом энергии F_{abs} амплитуда отрицательных давлений возрастает. И при $F_{abs} = F_{delam}$ наибольшее растягивающее напряжение на контакте достигает напряжения когезии. Поэтому если $F_{abs} > F_{delam}$, то пленка отделяется от стекла – имеет место деламинация от подложки. Для данного расчета с $F_{abs} = 10$ мДж/см² максимальное растягивающее напряжение составляет 0.68 ГПа. Оно достигается в момент времени 39.9 пс. При последующих колебаниях амплитуда растягивающего напряжения уменьшается.

Резкие падения давления в моменты времени примерно 20, 60, 100 и 140 пс на рис.8 вызваны приходом головной характеристики волны разрежения от левой границы (вакуум) на правую границу (стекло). В свой первый приход эта волна разрежения приносит информацию о существовании границы с вакуумом в толщу пленки золота и в стекло.

Отметим, что если распространение тепловой волны по двухтемпературному металлу происходит быстро, то время двухтемпературной релаксации в золоте довольно велико и составляет величину $10 \div 15$ пс. Это связано с большой массой ионов золота, из-за которой сильно замедляется электрон-ионный обмен энергией. Таким образом, время релаксации оказывается порядка звукового времени $t_s = d_f / c_s$. За время релаксации полное давление меняется из преимущественно электронного давления (на начальном этапе двухтемпературной стадии) на преимущественно ионное давление (в конце двухтемпературной стадии). Это меняет параметр Грюнайзена, который для ионной подсистемы примерно вдвое больше, чем у электронной подсистемы [35]. Поскольку внутренняя энергия, запасенная в пленке, мало меняется за время электрон-ионной релаксации, такое повышение параметра Грюнайзена ведет к повышению полного давления за время релаксации. Данное обстоятельство сказывается на профиле волны.

Деламинация пленки. В интервале поглощенных флюенсов $F_{delam} < F_{abs} < F_{abl}$ имеет место механическое отслоение пленки от подложки. Напряжение когезии между металлом и диэлектрической подложкой определяется поверхностной энергией их взаимодействия. Напряжения когезии p_{coh} находятся в диапазоне от нуля до порядка одного ГПа. Точные значения известны плохо. Вне окрестности порога деламинации, вариация p_{coh} в интервале значений $0 \div 1$ ГПа довольно слабо сказывается на скорости центра масс v отделившейся пленки. Дело в том, что далеко от порога деламинации, давления на контакте на стадии, когда происходит увеличение скорости центра масс v , положительны больше, чем величина p_{coh} . Кроме того, длительность стадии с положительными давлениями больше, чем длительность промежутка времени, на котором контактное давление становится отрицательным и достигает значения $-p_{coh}$ в конце данного промежутка времени. Вернемся к этому вопросу чуть ниже. А сейчас представим рис.9.

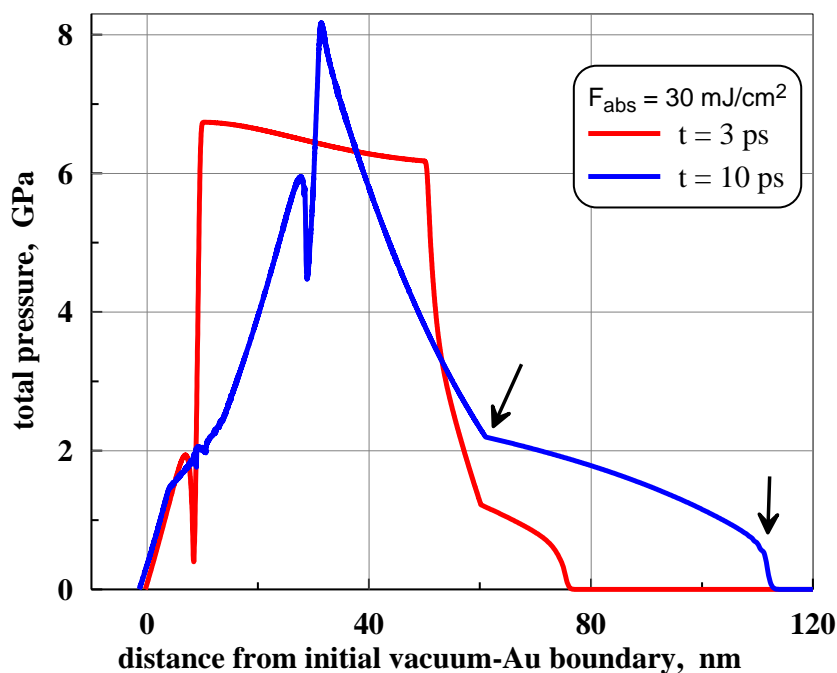


Рис. 9. Быстрый подъем давления в пленке и движение волн разрежения от контактов с вакуумом слева и со стеклом справа в толщу пленки. Стрелки указывают на позиции контакта и ударной волны на момент 10 пс

На рис. 9 показано распространение волн разрежения от краев пленки к ее центру и далее. На момент 3 пс волны разрежения проходят примерно 10 нм (начальная толщина пленки 60 нм). Волна разрежения состоит из резкого скачка и более плавного участка за ним. На левой волне разрежения виден провал, появление которого вызвано чрезвычайно резким ростом электронного давления в скин-слое золота во время действия очень короткого ($\tau_L = 100$ фс) лазерного импульса. Этот весьма резкий рост электронной температуры и электронного давления связан с облучаемой левой границей (граница с вакуумом). На правой границе его нет. Ширина провала мала, порядка $\tau_L c_s \sim 0.3$ нм. Это расстояние сравнимо с средним межатомным расстоянием. Поэтому он не виден в МД моделировании.

На момент 10 пс левая и правая волны разрежения проходят примерно по 30 нм и встречаются в центре пленки, см. рис. 9. Далее левая волна продолжает свое движение вправо, а правая налево. При этом амплитуда давления в центре начинает резко снижаться, см. рис. 10. Сравним две симуляции с разными значениями F_{abs} на рис. 6 и 9 на момент 3 пс. Давление выросло примерно прямо пропорционально вложенной энергии F_{abs} . Кроме того, видим, что давление вне зоны снижения давления из-за прибытия волн разрежения с краев пленки, растет во времени в течение двухтемпературной стадии. Сравним максимальные давления на рис. 9 на моменты времени 3 и 10 пс. Рост давления вызван переток энергии из более «мягкого» (параметр Грюнайзена меньше) электронного газа в более жесткую ионную подсистему. Отношение электронной и ионной внутренних энергий меняется во время двухтемпературной релаксации, а полная внутренняя энергия пленки остается примерно постоянной (потери из-за перехода в кинетическую энергию золота и кинетическую и внутреннюю энергию стекла малы).

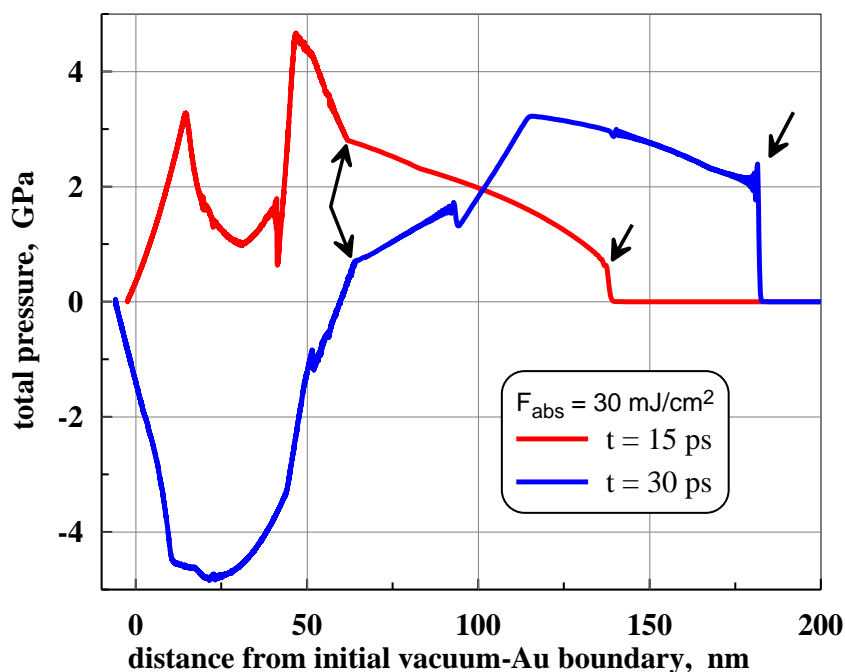


Рис. 10. Ситуация после прохода головных характеристик волн разрежения друг через друга (см. рис. 9, 10 пс, момент встречи характеристик), когда давление в центральной области пленки начинает быстро снижаться. На момент 30 пс идущая слева волна разрежения близка к выходу на контакт золото-стекло. Положения контакта отмечено двойной стрелкой. В центре пленки начинает действовать растягивающее напряжение

Давления в стекле существенно меньше, чем максимальные положительные и отрицательные (по модулю) давления в пленке. Положения ударной волны в стекле отмечены стрелками на рис. 10. При выбранном значении вложенной энергии F_{abs} гидродинамические скорости намного меньше, чем скорости звука – сравните расстояния, пройденные ударной

волной (две стрелки справа на рис.10), и сдвиг профиля давления слева (вблизи начала координат) на рис. 9. Отметим, что температура золота к концу двухтемпературной стадии составляет примерно 1800 К. Пленка полностью расплавлена.

На момент 30 пс давление на контакте золото-стекло еще положительное, см. рис.10, двойная стрелка. Двойная стрелка показывает, как снижается контактное давление на промежутке времени 15÷30 пс. В расчете, показанном на рис.9–11, за напряжение когезии p_{coh} принято значение 1 ГПа. Посмотрим, как снижается давление на контакте, как оно пересекает нулевое значение, как приближается и пересекает пороговое значение -1 ГПа. Пленка отделяется от подложки в момент, когда растягивающее напряжение на контакте достигает значения p_{coh} .

На рис.11 показаны два момента времени – до и после пересечения контактным давлением порогового значения p_{coh} , за которое принята величина -1 ГПа. В момент, когда снижающееся давление на контакте пересекает значение p_{coh} , давления на правой границе золота и на левой границе стекла *скачком* обращаются в *нуль*. В этот момент контакт золото-стекло разрывается в том смысле, что возникает зазор между краями золота и стекла. Давлением паров в зазоре пренебрегаем на фоне напряжений ~ 1 ГПа = 10^4 атм в конденсированной фазе, поэтому в зазоре и на его краях давление равно нулю

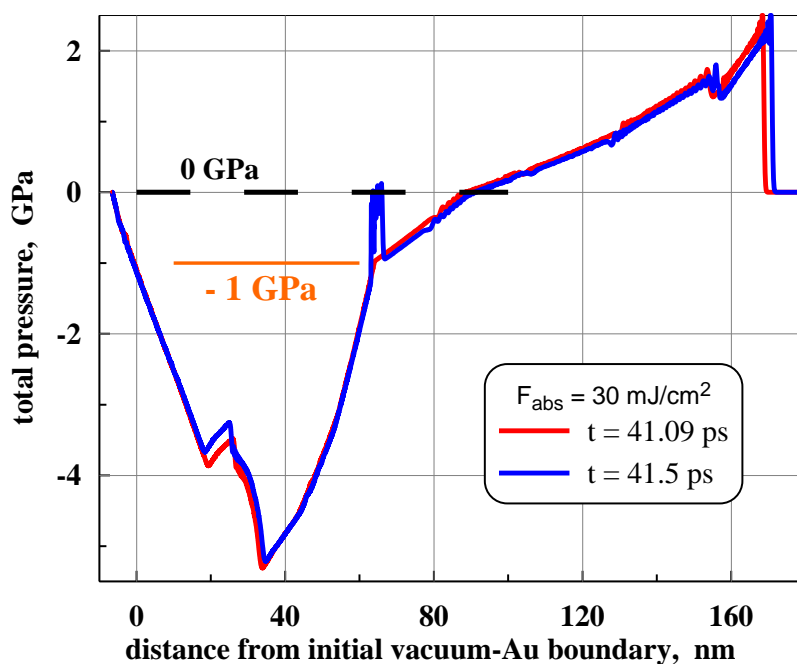


Рис. 11. Эволюция профиля давления в окрестности момента времени, в который происходит отделение пленки от стекла. В момент отделения, давление на контакте золото-стекло скачком изменяется от значения -1 ГПа до значения 0 . От места разрыва, с момента разрыва, в золото и в стекло распространяются откольные импульсы. За откольным импульсом в стекле давление падает до нуля, см. рис.12

Зазор медленно расширяется, а в золото (налево) и в стекло (направо) бегут откольные импульсы. Распространение откольных импульсов и расширение зазора показано на рис.12. Импульсы бегут со скоростями звука в золоте и в стекле, а зазор расширяется со скоростью $\sim 100 \div 150$ м/с, которая мала по сравнению со скоростью звука.

Стрелками на рис.12 в точках 55 и 84 нм отмечены положения фронтов откольных импульсов соответственно в золоте и стекле. В стекле скорость звука больше, поэтому откольный импульс пробегает большее расстояние (точка и момент старта у них одинаковые).

На границу стекла справа идет поток характеристик, которые несут тривиальную информацию о покоящемся однородном стекле, каким оно было до воздействия. Поскольку

после разрыва на границе стекла давление равно нулю, то отраженные характеристики остаются тривиальными. Поэтому за откольным импульсом в стекле, давление (см. рис.12) и скорость (см. рис.13) обращаются в нуль.

Наоборот, в золоте на границу золота с зазором идет поток характеристик, несущих нетривиальную информацию. Этот поток отражается от свободной границы (после разрыва контакт становится свободной границей) также нетривиальными характеристиками. Соответственно, за откольным импульсом в золоте ни напряжение, ни скорость не равны нулю, см. рис.12. На рис.12 путь, пройденный откольным импульсом в золоте на момент времени 45 пс, соответствует интервалу от левой стрелки до разрыва (скачок плотности золото-стекло). Откольные импульсы в золоте и стекле на моменты 41.5 и 45 пс также хорошо видны на рис.13. Путь, позади откольного импульса в стекле, больше, потому что скорость звука в стекле несколько больше, чем в золоте.

Напряжение когезии равно 1 ГПа. При отрицательном контактом давлении такой амплитуды произошел разрыв контакта в момент 41.10 пс. Поэтому амплитуда обоих откольных импульсов также равна 1 ГПа, см. рис.12.

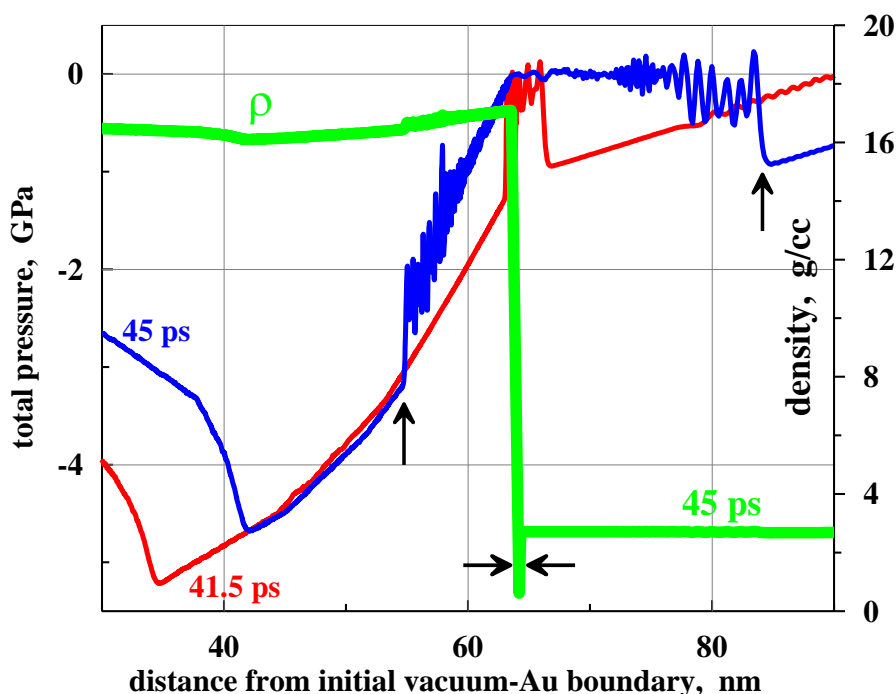


Рис. 12. Излучение слабых ударных волн (откольных импульсов) из точки разрыва контакта золото-стекло в момент разрыва 41.10 пс. Стрелки показывают позиции этих ударных волн в момент 45 пс в золоте и стекле. Двойной стрелкой отмечен зазор между расходящимися краями золота и стекла в момент 45 пс

Финальная скорость центра масс пленки после отделения от стекла в режиме 2.

Этот режим соответствует интервалу энергий $F_{delam} < F_{abs} < F_{abl}$, когда пленка отделяется от подложки целиком. До и после отрыва от стекла внутри пленки имеется нетривиальное распределение скорости. Скорость распределена неоднородно и это распределение нестационарно – оно складывается в результате игры правой и левой волн, бегающих по пленке. Однако скорость v центра масс пленки, разумеется, сразу перестает изменяться по времени после отрыва пленки. Изменение скорости центра масс происходит по закону

$$v(t) = (1/\mu) \int_0^t p(t_1) dt_1, \quad \mu = \int_1^2 \rho dz \quad (4)$$

Где под первым интегралом стоит давление на контакте, вернее давление в золоте на границе между золотом и стеклом. Этот интеграл делится на массу пленки, приходящуюся на единицу площади пленки. Пределы 1 и 2 во втором интеграле относятся к границам пленки.

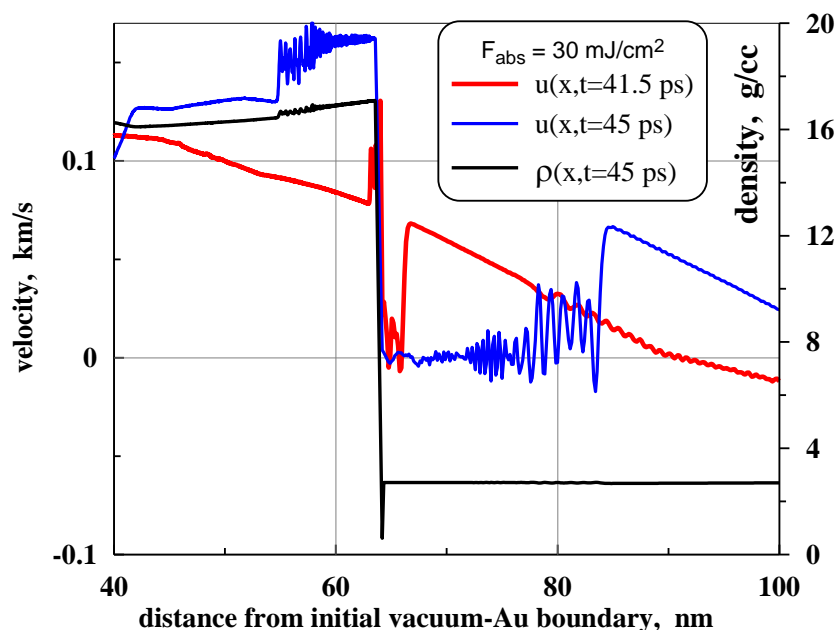


Рис.13. Распределения скорости и плотности в окрестности разорванного контакта золото-стекло

На первом полупериоде первого колебания на рис.8 контактное давление положительно, и скорость центра масс растет. На втором полупериоде давление на контакте становится отрицательным и скорость центра масс убывает. В колебательном режиме, когда отрыва пленки нет, средняя по времени скорость пленки равна нулю.

Рассмотрим режим $F_{delam} < F_{abs} < F_{abl}$, в котором происходит деляминация пленки с подложки. Возле нижнего порога отрыв пленки происходит в момент t_3 , примерно равный 40 пс (см. рис.8). Моменты t_1 и t_3 примерно равны 20 и 40 пс (см. рис.8). Они соответствуют первому максимуму положительного контактного давления и первому минимуму отрицательного давления на контакте на рис.8. В момент t_2 , примерно равный 25 пс, давление на контакте проходит через нуль. Возле порога F_{delam} отрыв происходит в момент t_3 , поскольку отрицательное давление в этот момент, взятое по абсолютной величине, является наибольшим и равным p_{coh} . Интеграл (4), взятый от нуля до момента времени t_3 , не равен нулю. Поскольку площади на первом полупериоде и первой половине второго полупериода не равны. То есть чуть выше порога деляминации F_{delam} пленка после отрыва летит с *конечной* скоростью.

Посмотрим, как сказывается величина p_{coh} на скорости центра масс. Рассмотрим расчет с $F_{abs} = 30$ мДж/см² при напряжении когезии p_{coh} равном нулю и при напряжении когезии равном 1 ГПа. Зависимость контактного давления от времени при 30 мДж/см² довольно близка к этой же зависимости при 10 мДж/см², если увеличить амплитуду с рис.8 примерно в три раза, а времена $t_1 - t_3$ оставить примерно теми же. При этом отрыв пленки от подложки при $p_{coh} = 0$ происходит в момент t_2 . Отрыв происходит мягко, без образования откольных импульсов, поскольку $p_{coh} = 0$. Скорость центра масс в этом случае 52 м/с. Если же $p_{coh} = -1$ ГПа, то отрыв имеет место в точке, находящейся на интервале времен между моментами времени t_2 и t_3 . Момент отрыва находится ближе к точке t_2 , а скорость центра масс снижается на 10% по сравнению со случаем отсутствия когезии $p_{coh} = 0$.

Порог абляции и внутренний разрыв пленки. Как говорилось выше, в зависимости от энергии F_{abs} имеются три режима, разделенные порогами F_{delam} и F_{abl} . Выше рассмотрены

1-й и 2-й режимы, относящиеся к случаям $F_{abs} < F_{delam}$ и $F_{delam} < F_{abs} < F_{abl}$. Остается рассмотреть последний случай: $F_{abl} < F_{abs}$. Выше порога абляции пленка разрывается в своей средней части. Причем это происходит до того, как зона растяжения золота охватывает всю пленку и выходит на контакт золото-стекло. На рис.14 представлен случай выше порога абляции. В пленку вложена энергия $F_{abs} = 40$ мДж/см². Начальная стадия эволюции сходна со случаем с $F_{abs} = 30$ мДж/см². От краев пленки внутрь распространяются две волны разрежения, давление в центре медленно повышается (из-за перекачки энергии электронов в более жесткую ионную подсистему). В момент 9 пс головные характеристики этих волн встречаются вблизи центральной плоскости пленки, профиль полного давления на момент 9 пс с $F_{abs} = 40$ мДж/см² похож на профиль на рис.9 в момент 10 пс для $F_{abs} = 30$ мДж/см². Максимальное полное (электроны плюс ионы) давление в случае 40 мДж/см² составляет 13 ГПа, а в случае 30 мДж/см² это давление немного выше 8 ГПа.

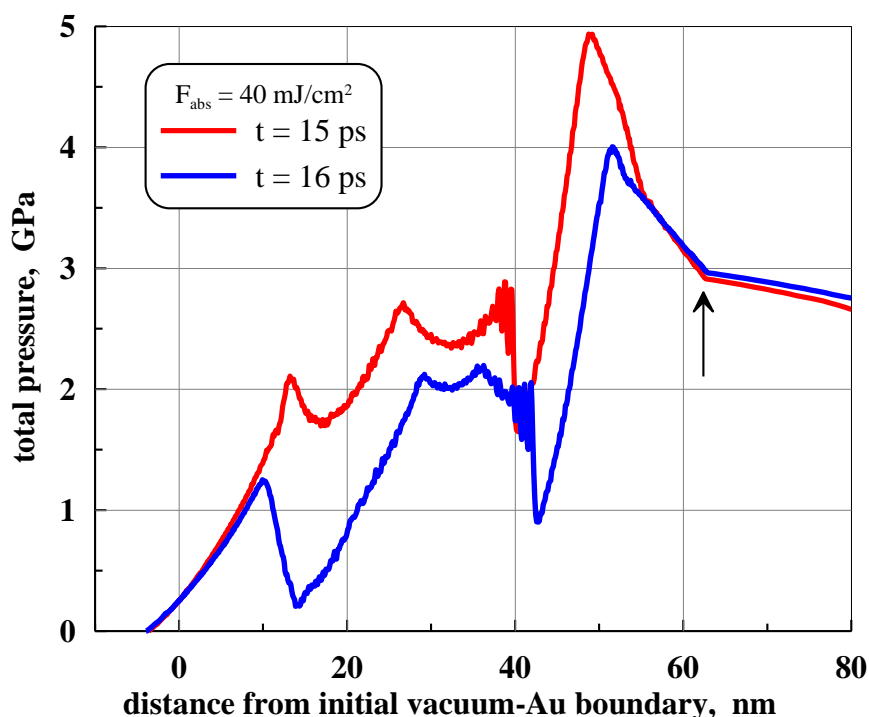


Рис.14. Быстрое снижение давлений после встречи волн разрежения в центре пленки в момент 9 пс. Стрелкой отмечено текущее положение контакта между золотом слева и стеклом справа

После встречи в центре волны разрежения проходят через друга и продолжают свое распространение дальше к краям пленки. При этом давление в центральной зоне начинает быстро снижаться (см. рис.14). Температура пленки выше температуры плавления золота. Малой теплопроводностью стекла пренебрегаем. Нагрев стекла слабой ударной волной, бегущей по стеклу, мал. Начальная температура (до нагрева лазером) равна 300 К. Распределения температур показаны на рис.15. В золоте электрон-ионная температурная релаксация идет медленно. Как видим, даже на момент 15 пс имеется существенная разница электронной и ионной температур, см. рис.15. Из-за большой электронной теплопроводности и малой толщины пленки электронная температура T_e практически однородно распределена по пленке золота. Небольшие неоднородности в распределении ионной температуры T_i связаны со следами нагрева лазером со стороны вакуума и с текущим мгновенным распределением давления по толщине пленки. Например, минимум температуры при $x = 40$ нм находится в точке минимума давления, сравните рис.14 и 15.

Для описания кавитационной нуклеации растянутого ($p < 0$) расплава золота были использованы МД расчеты, часть которых приведена в статье [18]. В них определялись давле-

ние (растягивающее напряжение) и температура в точке нуклеации. Известно, что при фиксированной температуре давление нуклеации зависит от времени, в течение которого образец находится под данным растягивающим напряжением, см. [54] и приведенные в этой статье ссылки.

Говорят, что давление термофлуктуационной нуклеации зависит от темпа деформации \dot{V}/V : больше темп - выше амплитуда растягивающего напряжения, которое требуется для появления жизнеспособного зародыша паровой фазы.

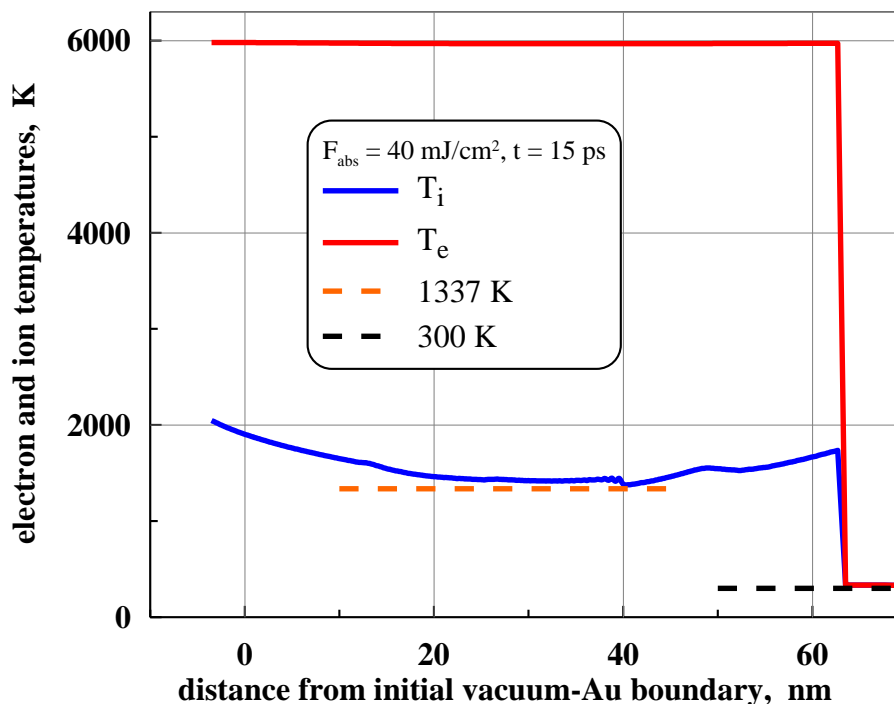


Рис. 15. Распределения ионной и электронной температур. Скачок температуры справа относится к контакту золото-стекло

Если давление и температура в точке нуклеации входят в экспоненциальный множитель в формуле для вероятности нуклеации, то темп деформации входит в предэкспоненциальный множитель. Поэтому влияние вариации толщины пленки (чем тоньше пленка, тем выше \dot{V}/V) на вероятность нуклеации намного слабее, чем влияние вариаций давления и температуры. Тем не менее, чтобы правильно рассчитать вероятность в задаче на рис.15, 16, в МД расчетах толщина пленки бралась по порядку величины такой же, как в рассматриваемой задаче о внутреннем разрыве пленки. Температура и плотность расплава в точке нуклеации при растяжении пленки толщиной порядка 0.1 мкм приведены в виде маркеров на рис.16, а температура и давление на рис.17. В МД расчетах использован ЕАМ потенциал золота, разработанный Жаховским [23] по данным, полученным методом функционала плотности. На рис.17 приведена аппроксимирующая кривая в виде параболы:

$$p = -5.04 + 0.0017T - 1.49 \times 10^{-7} T^2 \quad (5)$$

где температура берется в градусах Кельвина, а давления в ГПа. Эта кривая аппроксимирует данные МД расчетов. Она используется в 2Т-ГД коде для определения точки нуклеации.

На рис.18 приведены распределения давлений на момент 16 пс. В отличие от рис.14, здесь, кроме полного давления, показаны также электронное и ионное давления. Энергии в электронной подсистеме к 16-й пс остается немного, но двухтемпературная релаксация еще незакончена, см. рис.15. Поэтому имеется заметное электронное давление. Обсуждению вопросов связанных с электронным давлением посвящена заключительная часть раздела 2

выше. Будем полагать, что в двухтемпературных состояниях процесс нуклеации определяется степенью растяжения расплава относительно равновесной плотности, которую будем определять при фиксированной ионной температуре. Дело в том, что рассматриваемые здесь ионные температуры относительно невелики в том плане, что в одностепенных состояниях с такой температурой электронный вклад во внутреннюю энергию и давление мал.

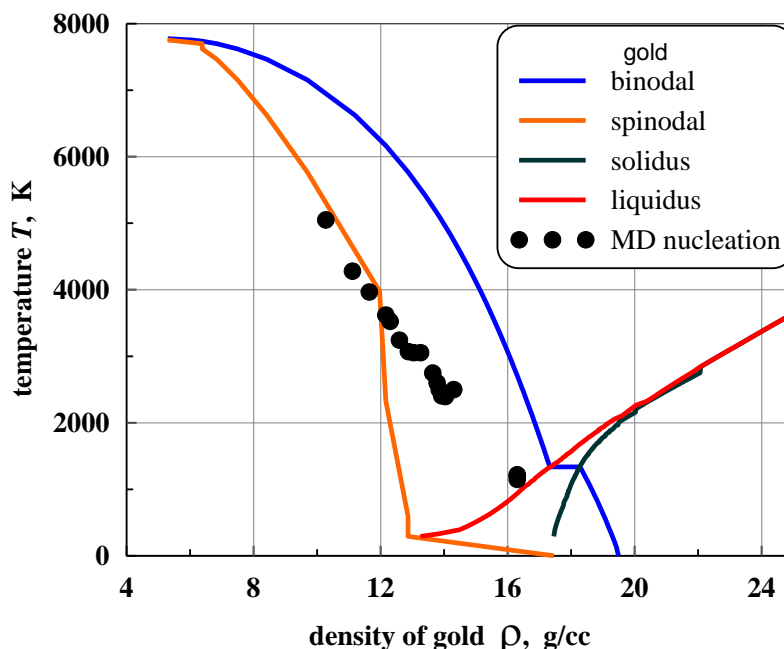


Рис. 16. Давление и температура в точке нуклеации пленок толщиной ~ 0.1 мкм согласно данным [18] (черные кружочки). Фазовые кривые на плоскости плотность – температура. Кривые плавления продолжены внутрь метастабильной области (полоска между бинодалью и спинопалью), см. также [14]. Любопытно, при температуре примерно 3500 К МД точки выходят на спинопаль данного уравнения состояния

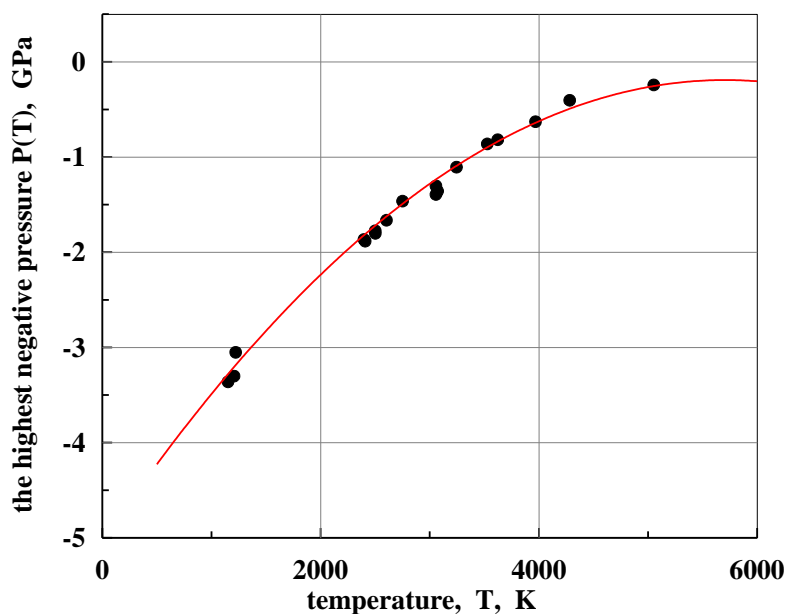


Рис. 17. Температура и давление, при достижении которых начинается нуклеация в золоте

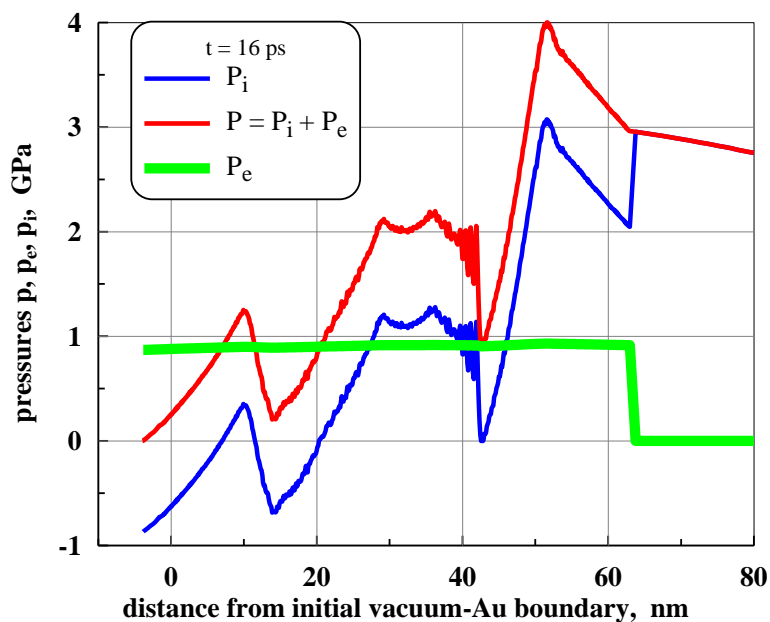


Рис.18. Распределения давлений. $F_{abs} = 40 \text{ мДж/см}^2$. Электронное давление дополнительно (дополнительно по сравнению с однотемпературной волной разрежения) растягивает ионную подсистему. Поэтому ионное давление p_i становится отрицательным, хотя полное давление еще положительно. Волны растяжения прошли центр пленки и создают зону растяжения, давление в которой снижается, см. рис.14, а ширина зоны растяжения растет. В стекле электронным давлением p_e можно пренебречь

Электронный вклад становится существенным, если температура электронов намного превышает ионную температуру. Поэтому на ту или иную величину степени растяжения указывает давление p_i в ионной подсистеме. Если давление p_i положительно, то систему будем называть сжатой, в обратном случае – растянутой.

В момент 19.5 пс максимальное растягивающее напряжение достигает значения, которое определяется формулой (5). Начинается нуклеация и механический внутренний разрыв пленки. Профили давлений на моменты 19 и 20 пс показаны на рис.19.

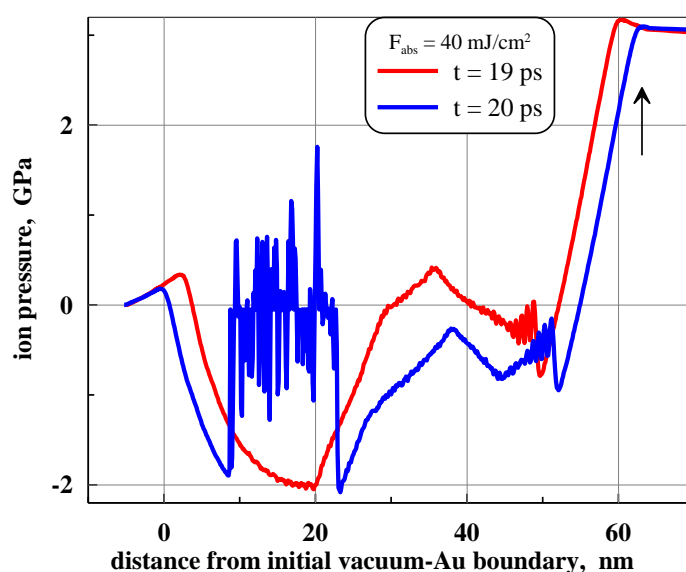


Рис.19. Эволюция профилей ионного давления от момента времени до внутреннего разрыва пленки до момента времени после разрыва. Сравнение полного и парциального давлений приведено на рис. 18 выше. Положение контакта золото-стекло в момент 20 пс отмечено стрелкой

К 20 пс разрыв охватывает значительный по толщине слой от 9 нм до до 23 нм. Напомним, что до лазерного воздействия вещество пленки занимало отрезок от 0 до 60 нм. Профиль ионного давления $p(x,t)=20$ ps на интервале $9 < x < 23$ нм сильно флуктуирует возле нулевого значения (см. рис. 19). В момент 20 пс первая характеристика волны разрежения, которая бежит слева направо от границы с вакуумом, подходит к контакту со стеклом, сравните рисунки 14, 18–19. Давление на контакте в момент внутреннего разрыва пленки и некоторое время после внутреннего разрыва остается положительным

3.2. Формирование и разрушение купола, финальная морфология

Рассмотрим формирование купола после деламинации пленки от стеклянной подложки. В разделах 2 и 3.1 выше гидродинамическое течение было одномерным, гидродинамическая скорость была направлена по нормали к поверхности плоской мишени, поперечными градиентами пренебрегалось. Теперь рассмотрим случай фокусировки лазерного пучка в малое пятно. В связи с экспериментами [48–50, 55,56] нас интересует случай, когда радиус лазерного пятна R_L на поверхности мишени больше толщины пленки d_f ; определения этих масштабов даны на рис. 1. Тогда при расчете деламинации можно использовать одномерную гидродинамику, как это было сделано в разделе 3.1. При этом скорость центра масс пленки направлена по нормали к поверхности мишени. Здесь речь идет о центре масс локальной точки на плоскости мишени. То есть это центр масс пленки на отрезке, проходящем по пленке по нормали к плоскости мишени в данной точке.

После деламинации пленка летит вверх, см. рис. 1 и 5, по нормали к плоскости мишени. Такой прямолинейный полет продолжается до тех пор, пока расстояние между пленкой и подложкой мало по сравнению с радиусом R_L . Дело в том, что далее рассматривается ситуация [48–50,55,56], в которой поверхностное натяжение летящей расплавленной пленки оказывает существенное влияние на динамику движения [53, 57]. Это влияние становится заметным, когда расстояние между пленкой и подложкой становится сопоставимым с радиусом R_L . При пролете таких расстояний, кривизна купола, который формирует пленка на рис. 5, становится порядка радиуса R_L . Появление купола связано с тем, что распределение поглощенного флюенса имеет максимум на оси лазерного пучка на рис. 1. Поэтому максимальная скорость удаления от подложки также имеет максимум на оси пучка [53,57]. Далее скорость пленки плавно спадает в радиальных направлениях от оси пучка. Эта скорость обращается в нуль на пороге деламинации F_{delam} , см. начало раздела 3.1. Таким образом, при моделировании купола учитывается поперечный градиент поглощенного флюенса и поперечный градиент нормальной к поверхности скорости пленки после отделения ее от подложки.

В похожей постановке задача рассматривалась в работах [53, 57]. Но, в отличие от этих работ, здесь впервые учитывается влияние замораживания расплава золота на динамику нанокупола. Это исключительно важный эффект, определяющий финальную морфологию созданных лазером фигур на поверхности. Пусть функция $F(x, y)$ дает распределение поглощенного флюенса по поверхности мишени. Пусть скорость пленки сразу после отделения (деламинации) от подложки равна v_z . Распределение скорости $v_z(x, y)$ определяется распределением флюенса $F(x, y)$. Таким образом, варьируя $F(x, y)$, можно создавать то или иное распределение $v_z(x, y)$, см. пример к кольцевым распределением флюенса в [55].

Ясно, что с распределением $v_z(x, y)$ связана форма летящей пленки. Далее текущая и финальная форма пленки определяется игрой трех факторов. Это, во-первых, распределение начальной скорости $v_z(x, y)$, во-вторых, капиллярные эффекты [53,57], и, в-третьих, темп остывания и затвердевания жидкой пленки, поскольку для приложений [48–50, 55,56] наиболее содержательным является случай, когда лазерный импульс плавит пленку. На рисунках 20 и 21 показан пример эволюции формы пленки и процесс кристаллизации, зеленый цвет соответствует твердому телу, а красный – расплаву золота.

Приведем параметры трехмерного молекулярно-динамического (МД) расчета, показанного на рисунках 20 и 21. Размеры ящика в плоскости мишени составляли $140 \times 140 \text{ нм}^2$. Толщина пленки до ее расплавления термостатом равна 5 нм, число атомов в расчете 5951456. На стенках ящика в плоскости мишени (боковые стенки) ставились периодические граничные условия. Снизу область МД расчета ограничивала неподвижная плоскость подложки. Движение подложки существенно на короткой стадии деламинации пленки. На стадии формирования купола этим движением допустимо пренебречь. Скорость пленки после ее отделения от подложки равна $v_z = v_0 [\cos(\pi r / (2R_L))]^2$, где $v_0 = 385 \text{ м/с}$; $R_L = 65 \text{ нм}$; r – цилиндрический радиус, отсчитываемый от оси пучка. Область между квадратом $140 \times 140 \text{ нм}^2$ и кругом с радиусом $R_L = 65 \text{ нм}$ удерживалась на подложке с помощью термостата. Эта область отчетливо видна на левом из рис. 20. Вначале вся пленка неподвижна. Термостат за несколько пикосекунд создает в пленке распределение температуры

$$T = (T_c - T_L) [\cos(\pi r / (2R_L))]^2 + T_L$$

при $0 < r < R_L$ и $T = T_L$ при $r > R_L$; $T_c = 2000$; $T_L = 1500 \text{ К}$. Затем термостат сообщает пленке указанное выше распределение скорости. При этом подогрев термостатом внутри круга R_L выключается. А в области между квадратом и кругом начинает поддерживаться температура 500 К. Отсчет времени начинается после сообщения пленке начального распределения скорости v_z . Тепло из горячего пятна отводится по пленке в область между квадратом и кругом. Коэффициент теплопроводности равен $21.42 \text{ Вт м}^{-1} \text{ К}^{-1}$. Теплоотвод осуществлялся с помощью блока Монте-Карло, в котором можно настраивать коэффициент теплопроводности на требуемое значение. Ниже пояснено, из каких соображений выбирался коэффициент теплопроводности. Описание блока теплопроводности дано в [46]. Теплопроводностью стеклянной подложки можно пренебречь.

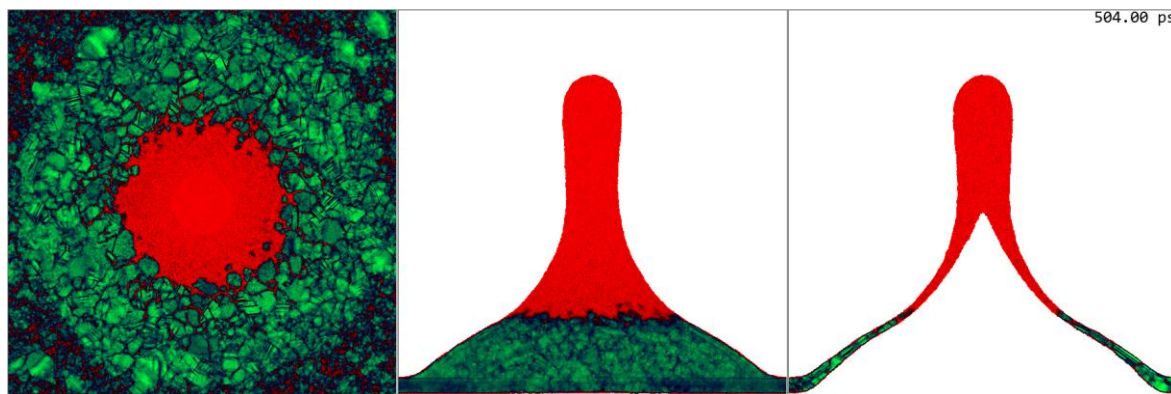


Рис. 20. Мгновенное положение летящей и замерзающей пленки на момент времени 504 пс. Слева – вид сверху на осесимметричный купол. Посередине – вид сбоку. Справа – вид пленки в сечении купола плоскостью, проходящей через ось вращения купола. При движении толщина пленки меняется. В приосевой зоне образуется струя. Зеленый цвет относится к твердой фазе, а красный – к жидкой. Флуктуации зеленого цвета соответствуют зернам нанокристаллитов. Вертикальный и горизонтальный масштабы одинаковы. Сторона квадрата равна 140 нм

На рис. 21 показана практически финальная форма замороженного нанокупола со струей и каплей на вершине струи. Затвердевание жидкой пленки резко уменьшает растяжимость пленки. Это решающим образом сказывается на динамике процесса. В случае, показанном на рис. 20 и 21, максимальная высота подъема купола составляет примерно $1.3 \times R_L$. Эта высота достигается в момент времени 400 пс. После этого купол из пленки начинает снижаться под действием тормозящих сил поверхностного натяжения.

Для использованного в МД моделировании потенциала межатомного взаимодействия золота коэффициент поверхностного натяжения равен $546[(1-T/T_c)/(1-T_3/T_c)]^{5/4}$ дин/см [57], температура тройной точки $T_3 = 1337$ К, критическая температура $T_c = 7756$ К. Как сказано, после максимума в момент 400 пс купол начинает снижаться. При этом из его вершины начинает расти струя. Форма примерно параболического купола сильно меняется после прохождения максимума. Образуются параболический купол, который движется вниз, и струя, в которой вещество продолжает движение вверх.

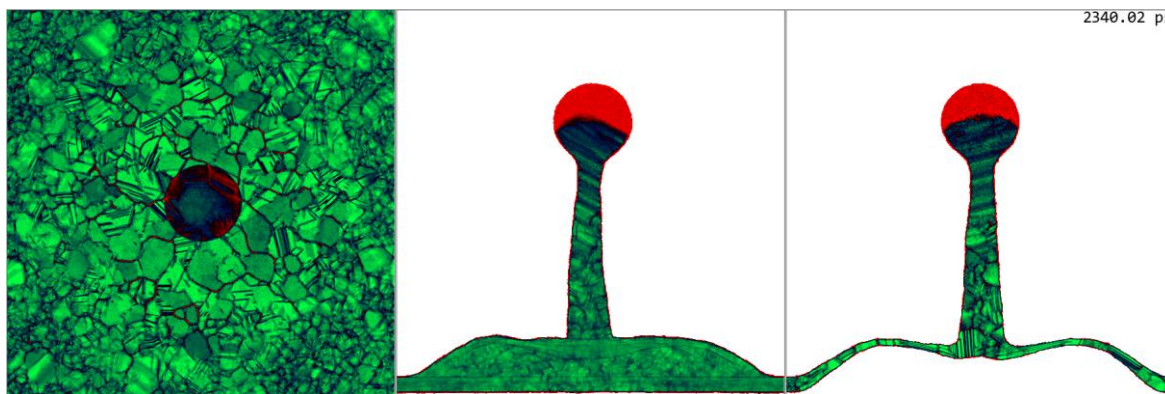


Рис. 21. Момент времени 2340.02 пс. Кристаллизация купола почти завершена, в жидком состоянии остается только верхушка капли, венчающей замороженную струю. Тепло отводится по веществу золотой пленки из горячего пятна на холодную периферию

По куполу вверх от области холодной пленки $r > R_L$ движется фронт рекристаллизации. Жидкость перед ним оказывается сильно переохлажденной. Поэтому зародыши твердой фазы иногда возникает не только на фронте кристаллизации, но и внутри объема расплава, и на свободной поверхности. В наших расчетах скорость фронта кристаллизации не превышает величины 140 м/с при затвердевании пленки купола и примерно 70 м/с при кристаллизации струи, сравните с [44, 45]. В условиях ограничения темпа кристаллизации при сохранении мощного теплопроводностного отвода тепла происходит сильное переохлаждение расплава. За фронтом затвердевания остается нанокристаллизованное твердое тело, см. также [58, 59]. Мозаика зеленого на рис. 20 и 21 показывает структуру поликристаллической твердой пленки.

Жесткость твердой фазы останавливает движение купола вниз к подложке. При этом купол совершает 2–3 затухающие осцилляции около равновесной формы, поскольку движение вниз деформирует затвердевший упругий купол ниже равновесной формы. Отметим нарушение точной азимутальной симметрии – струя на рис. 21 немного искривлена. Отметим также, что затвердевший и остановившийся купол немного прогнут вниз возле струи, см. правый из рисунков 21.

В опытах [48–50] используется пленка толщиной $d_f = 30 \div 60$ нм; радиус R_L составляет $0.4 \div 3$ мкм; длительность фемтосекундного импульса $30 \div 150$ фс; поглощенный флюенс порядка $20 \div 40$ мДж/см², как в разделе 3.1.

Имеются три характерные скорости:

- начальная скорость пленки на оси лазерного пучка v_0 ,
- капиллярный масштаб скорости $v_\sigma = 2\sqrt{\sigma/\Sigma_0}$
- и тепловой масштаб скорости $v_\chi = \chi/2R_L$,

где σ – коэффициент поверхностного натяжения; Σ_0 – начальная массовая плотность пленки на единицу площади пленки г/см² и $\chi = \kappa/c$ – коэффициент температуропроводности; κ – коэффициент теплопроводности; c – коэффициент теплоемкости.

Из этих трех скоростей можно составить два безразмерных отношения v_σ/v_0 и v_χ/v_0 . Две задачи с разными масштабами эквивалентны, если два безразмерных отношения одинаковы.

В расчетах на рис. 20, 21 скорости равны $v_0 = 385$ м/с, $v_\sigma = 150$ м/с, $v_\chi = 66$ м/с; безразмерные отношения равны $v_\sigma/v_0 = 0.4$ и $v_\chi/v_0 = 0.2$. Типичные скорости и их отношения в экспериментах [48–50] равны: $v_0 = 100 \div 150$ м/с, $v_\sigma = 60$ м/с, $v_\chi = 50$ м/с, $v_\sigma/v_0 = 0.6 \div 0.4$ и $v_\chi/v_0 = 0.5 \div 0.3$. Сравнивая параметры расчета и опытов, приходим к выводу, что расчет, показанный на рис. 20 и 21 хорошо аппроксимирует эксперименты [48–50].

Заключение

В работе сравниваются две задачи. Одна с большим пятном лазерного нагрева на объемной мишени (раздел 2) и другая с малым пятном на тонкой пленке (раздел 3). Показано, что геометрия задачи сильно сказывается на течении, которое возникает вследствие фемтосекундного воздействия. Если в первом случае выше порога абляции происходит вспенивание расплава (рис. 2), то во втором случае в интересующем экспериментаторов случае [48–50] пленка отделяется от подложки и образует вздутие на подложке, см. рис. 5, 20 и 21. Получены новые результаты относительно формирования замороженных струй на вершине нанокупола. По-видимому, впервые описаны три режима движения пленки на подложке после облучения пленки фемтосекундным импульсом, см. раздел 3.1. Это колебательный режим, режим деламинации пленки в целом и режим внутреннего разрыва пленки.

Благодарности. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект №14-19-01599). Молекулярно-динамическое моделирование было проведено на суперкомпьютере "Ломоносов" Московского Государственного Университета.

Литература

1. Анисимов С.И., Капелиович Б.Л., Перельман Т.Л. Электронная эмиссия с поверхности металлов под действием ультракоротких лазерных импульсов // ЖЭТФ, 1974, Т.66. С. 776–779.
2. Hofled J., Wellershoff S.-S., Guedde J., Conrad U., Jaehnke V., Matthias E. Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals // Chemical Physics, 2000, Vol.251, Pp. 237–258.
3. Temnov V.V., Sokolowski-Tinten K., Zhou P., von der Linde D. Ultrafast imaging interferometry at femtosecond laser excited surfaces // J. Opt. Soc. Am. B, 2006, Vol.23, N.9, Pp. 1954–1964.
4. Sokolowski-Tinten K., Bialkowski J., Cavalleri A., von der Linde D., Oparin A., Meyerter-Vehn J., Anisimov S.I. Transient states of matter during short pulse laser ablation // Phys. Rev. Lett., 1998, V.81, Pp. 224–227.
5. Inogamov N.A., Petrov Yu.V., Anisimov S.I., Oparin A.M., Shaposhnikov N.V., von der Linde D., Meyer-ter-Vehn J. Expansion of matter heated by an ultrashort laser pulse // JETP Lett., 1999, V.69, Pp. 310–316.
6. Zhakhovskii V.V., Nishihara K., Anisimov S.I., Inogamov N.A. Molecular-dynamics simulation of rarefaction waves in media that can undergo phase transitions // JETP Lett., 2000, V.71, Pp.167–172.
7. Antoun T., Seaman L., Curran D.R., Kanel G.I., Razorenov S.V., Utkin A.V. Spall Fracture. Springer. 2003.
8. Kanel G.I., Razorenov S.V., Fortov, V.E. Shock-Wave Phenomena and the Properties of Condensed Matter. Springer. 2004.
9. Агранат М.Б., Анисимов С.И., Ашитков С.И., Жаховский В.В., Иногамов Н.А., Комаров П.С., Овчинников А.В., Фортов В.Е., Хохлов В.А., Шепелев В.В. Прочностные свойства расплава алюминия в условиях экстремально высоких темпов растяжения при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов // Письма в ЖЭТФ, 2010, Т.91, С.517–523.
10. Ашитков С.И., Агранат М.Б., Канель Г.И., Комаров П.С., Фортов В.Е. Поведение алюминия вблизи предельной теоретической прочности в экспериментах с фемтосекундным лазерным воздействием // Письма в ЖЭТФ, 2010, Т.92, С.568–573.

11. Жаховский В.В., Иногамов Н.А. Упруго-пластические явления в ультракоротких ударных волнах // Письма в ЖЭТФ, 2010, Т.92, С.574–579.
12. Zhakhovsky V.V., Budzevich M.M., Inogamov N.A., Oleynik I.I., and White C.T. Two-zone elastic-plastic single shock waves in solids // Phys. Rev. Lett., 2011, Vol.107, 135502.
13. Lorazo P., Lewis L.J, Meunier M. Thermodynamic pathways to melting, ablation, and solidification in absorbing solids under pulsed laser irradiation // Phys. Rev. B, 2006, V.73, 134108.
14. Povarnitsyn M.E., Itina T.E., Sentis M., Khishchenko K.V., Levashov P.R. Material decomposition mechanisms in femtosecond laser interactions with metals // Phys. Rev. B, 2007, V.75, 235414.
15. Perez D., Béland L. K., Deryng D., Lewis L. J., Meunier M. Numerical study of the thermal ablation of wet solids by ultrashort laser pulses // Phys. Rev. B, 2008, V.77, 014108.
16. Upadhyay A.K., Inogamov N.A., Rethfeld B., Urbassek H.M. Ablation by ultrashort laser pulses: Atomistic and thermodynamic analysis of the processes at the ablation threshold // Phys. Rev. B, 2008, V.78, 045437.
17. Zhigilei L.V., Lin Z., Ivanov D.S. Atomistic Modeling of Short Pulse Laser Ablation of Metals: Connections between Melting, Spallation, and Phase Explosion // J. Phys. Chem. C, 2009, V.113, Pp. 1892–11906.
18. Demaske B.J., Zhakhovsky V.V., Inogamov N.A., Oleynik I.I. Ablation and spallation of gold films irradiated by ultrashort laser pulses // Phys. Rev. B, 2010, V.82, 064113.
19. Gill-Comeau M. and Lewis L.J. Ultrashort-pulse laser ablation of nanocrystalline aluminum // Phys. Rev. B, 2011, V.84, 224110.
20. Demaske B.J., Zhakhovsky V.V., Inogamov N.A., Oleynik I.I. Ultrashort shock waves in nickel induced by femtosecond laser pulses // Phys. Rev. B, 2013, V.87, 054109.
21. Inogamov N.A., Zhakhovskii V.V., Ashitkov S.I., Petrov Yu.V., Agranat M.B., Anisimov S.I., Nishihara K., Fortov V.E. Nanospallation induced by an ultrashort laser pulse // JETP, 2008, V.107, Pp.1–19.
22. Anisimov S.I., Inogamov N.A., Petrov Yu.V., Khokhlov V.A., Zhakhovskii V.V., Nishihara K., Agranat M.B., Ashitkov S.I., Komarov P.S. Interaction of short laser pulses with metals at moderate intensities // Appl. Phys. A, 2008, V.92, Pp. 939–943.
23. Zhakhovskii V.V., Inogamov N.A., Petrov Yu.V., Ashitkov S.I., Nishihara K. Molecular dynamics simulation of femtosecond ablation and spallation with different interatomic potentials // Appl. Surf. Sci., 2009, Vol.255, N24, Pp.9592–9596 (2009).
24. Inogamov N.A., Petrov Yu.V., Zhakhovsky V.V., Khokhlov V.A., Demaske B.J., Ashitkov S.I., Khishchenko K.V., Migdal K.P., Agranat M.B., Anisimov S.I., Fortov V.E., Oleynik I.I. Two-temperature thermodynamic and kinetic properties of transition metals irradiated by femtosecond lasers // Intern. Symp. High Power Laser Ablation 2012; AIP Conf. Proc., 2012, Vol.1464, Pp. 593–608; doi: 10.1063/1.4739912.
25. Schaefer C., Urbassek H.M., Zhigilei L.V. Metal ablation by picosecond laser pulses: A hybrid simulation // Phys. Rev. B, 2002, Vol.66, 115404.
26. Leveugle E., Ivanov D.S., Zhigilei L.V. Photomechanical spallation of molecular and metal targets: molecular dynamics study // Appl. Phys. A, 2004, Vol.79, Pp. 1643–1655.
27. Chen J., Tomov I.V., Elsayed-Ali H.E., Rentzepis P.M. Hot electrons blast wave generated by femtosecond laser pulses on thin Au(111) crystal, monitored by subpicosecond X-ray diffraction // Chemical Physics Letters, 2006, Vol.419, Pp. 374–378.
28. Gan Yo., Chen J.K. An atomic-level study of material ablation and spallation in ultrafast laser processing of gold films // J. Appl. Phys., 2010, Vol.108, 103102.
29. Gan Yo., Chen J.K. Thermomechanical wave propagation in gold films induced by ultrashort laser pulses // Mechanics of Materials, 2010, Vol.42, Pp. 491–501.
30. Chen J., Chen W.-K., and Rentzepis P.M. Blast wave and contraction in Au(111) thin film induced by femtosecond laser pulses. A time resolved x-ray diffraction study // J. Appl. Phys., 2011, Vol.109, 113522.
31. Fal'kovsky L.A., Mishchenko E.G. Electron-lattice kinetics of metals heated by ultrashort laser pulse // ЖЭТФ, 1999, Т.115, N1, С.149–157.
32. Inogamov N.A., Zhakhovsky V.V., Khokhlov V.A., Ashitkov S.I., Emirov Yu.N., Khichshenko K.V., Faenov A.Ya., Pikuz T.A., Ishino M., Kando M., Hasegawa N., Nishikino M., Komarov P.S., Demaske B.J., Agranat M.B., Anisimov S.I., Kawachi T., Oleynik I.I. Ultrafast lasers and solids in

- highly excited states: results of hydrodynamics and molecular dynamics simulations // *J. Phys.: Conf. Ser.*, 2014, Vol.510, 012041.
33. Inogamov N.A., Zhakhovsky V.V., Khokhlov V.A., Demaske B.J., Khishchenko K.V., and Oleynik I.I. Two-temperature hydrodynamic expansion and coupling of strong elastic shock with supersonic melting front produced by ultrashort laser pulse // *J. Phys.: Conf. Ser.*, 2014, Vol.500, 192023.
 34. Initsky D.K., Khokhlov V.A., Inogamov N.A., Zhakhovsky V.V., Petrov Yu.V., Khishchenko K.V., Migdal K.P., and Anisimov S.I. Two-temperature hydrodynamics of laser-generated ultrashort shock waves in elasto-plastic solids // *J. Phys.: Conf. Ser.*, 2014, Vol.500, 032021.
 35. Petrov Yu. V., Migdal K.P., Inogamov N. A., Zhakhovsky V. V. Two-temperature equation of state for aluminum and gold with electrons excited by a ultrashort laser pulse // *Appl. Phys. B: Lasers and Optics*, sent to Journal.
 36. Норман Г.Э., Стариков С.В., Стегайлов В.В. Атомистическое моделирование лазерной абляции золота: эффект релаксации давления // *ЖЭТФ*, 2012, Т.141, N5, С.910–918.
 37. Norman G., Starikov S., Stegailov V., Fortov V., Skobelev I., Pikuz T., Faenov A., Tamotsu S., Kato Y., Ishino M., Tanaka M., Hasegawa N., Nishikino M., Ohba T., Kaihori T., Ochi Y., Imazono T., Fukuda Y., Kando M., and Kawachi T. Nanomodification of gold surface by picosecond soft x-ray laser pulse // *J. Appl. Phys.*, 2012, Vol.112, 013104.
 38. Norman G. E., Starikov S.V., Stegailov V.V., Saitov I.M., and Zhilyaev P.A. Atomistic Modeling of Warm Dense Matter in the Two-Temperature State // *Contrib. Plasma Phys.*, 2013, Vol.53, N2, Pp. 129–139.
 39. Starikov S.V., Faenov A.Ya., Pikuz T.A., Skobelev I.Yu., Fortov V.E., Tamotsu S., Ishino M., Tanaka M., Hasegawa N., Nishikino M., Kaihori T., Imazono T., Kando M., Kawachi T. Soft picosecond X-ray laser nanomodification of gold and aluminum surfaces // *Appl. Phys. B: Lasers and Optics*, 2014, Vol.116, N4, Pp. 1005–1016.
 40. Inogamov N.A., Zhakhovsky V.V., Ashitkov S.I., Emirov Yu.N., Faenov A.Ya., Pikuz T.A., Ishino M., Kando M., Hasegawa N., Nishikino M., Kawachi T., Agranat M.B., Andriash A.V., Kuratov S.E., Oleynik I.I. Surface nano-structuring produced by spallation of metal irradiated by ultrashort laser pulse // *J. Phys. Conf. Ser.*, 2014, Vol.500, 112070.
 41. Zhakhovskii V.V., Inogamov N.A., Nishihara K. New mechanism of the formation of the nanorelief on a surface irradiated by a femtosecond laser pulse // *JETP Lett.*, 2008, Vol.87, N8, Pp.423–427.
 42. Zhakhovskii V., Inogamov N., Nishihara K. Laser ablation and spallation of crystalline aluminum simulated by Molecular Dynamics // *J. Phys.: Conf. Ser.*, 2008, Vol.112, 042080.
 43. Ashitkov S.I., Inogamov N.A., Zhakhovsky V.V., Emirov Yu.N., Agranat M.B., Oleinik I.I., Anisimov S.I., and Fortov V.E., Formation of Nanocavities in Surface Layer of Aluminum Target irradiated by Femtosecond Laser Pulse // *JETP Letters*, 2012, Vol.95, N4, Pp. 176–181.
 44. Chan W.-L., Averbach R.S., Cahill D.G., and Ashkenazy Yi. Solidification Velocities in Deeply Undercooled Silver // *Phys. Rev. Lett.*, 2009, Vol.102, 095701.
 45. Chan W.-L., Averbach R.S., Cahill D.G., and Lagoutchev A. Dynamics of femtosecond laser-induced melting of silver // *Phys. Rev. B*, 2008, Vol.78, 214107.
 46. Inogamov N.A., Zhakhovsky V.V., Faenov A.Y., Khokhlov V.A. , Shepelev V.V., Skobelev I.Y., Kato Y., Tanaka M., Pikuz T.A., Kishimoto M., Ishino M., Nishikino M., Fukuda Y., Bulanov S.V., Kawachi T., Petrov Y.V., Anisimov S.I., Fortov V.E. Spallative ablation of dielectrics by X-ray laser // *Appl. Phys. A*, 2010, Vol.101, N1, P.87-96; arXiv:0912.3184 [physics.optics].
 47. Wu Ch., Zhigilei L.V. Microscopic mechanisms of laser spallation and ablation of metal targets from large-scale molecular dynamics simulations // *Appl. Phys. A*, 2014, Vol.114, Pp. 11–32.
 48. Unger C., Koch J., Overmeyer L., and Chichkov B.N. Time-resolved studies of femtosecond-laser induced melt dynamics // *Optics Express*, 2012, Vol.20, N22, 24864.
 49. Nakata Yo., Tsuchida K., Miyanaga N., Okada T. Nano-Sized and Periodic Structures Generated by Interfering Femtosecond Laser // *Journal of Laser Micro/Nanoengineering*, 2008, Vol.3, N2, Pp. 63–66.
 50. Емельянов В.И., Заярный Д.А., Ионин А.А., Киселева И.В., Кудряшов С.И., Макаров С.В., Нгуен Ч.Т.Х., Руденко А.А. Наномасштабная гидродинамическая неустойчивость расплава при абляции тонкой пленки золота фемтосекундным лазерным импульсом // *Письма ЖЭТФ*, 2014, Т.99, N9, С.601–605.

51. Анисимов С.И., Жаховский В.В., Иногамов Н.А., Нишихара К., Опарин А.М., Петров Ю.В. Разрушение твердой пленки в результате действия ультракороткого лазерного импульса // Письма ЖЭТФ, 2003, Т.77, N11, С.731–736.
52. Anisimov S.I., Zhakhovskii V.V., Inogamov N.A., Nishihara K., Petrov Yu.V. Simulation of the expansion of a crystal heated by an ultrashort laser pulse // Appl. Surf. Sci., 2007, Vol.253, N15, Pp. 6390–6393.
53. Inogamov N.A. and Zhakhovskii V.V. Formation of Nanojets and Nanodroplets by an Ultrashort Laser Pulse at Focusing in the Diffraction Limit // JETP Lett., 2014, Vol.100, N1, Pp.4–10.
54. Ashitkov S.I., Komarov P.S., Ovchinnikov A.V., Struleva E.V., Zhakhovskii V.V., Inogamov N.A., Agranat M.B. Ablation and nanostructuring of metals by femtosecond laser pulses // Quantum Electronics, 2014, Vol.44, N6, Pp. 535–539.
55. Zywietz U., Reinhardt C., Evlyukhin A.B., Birr T., Chichkov B.N. Generation and patterning of Si nanoparticles by femtosecond laser pulses // Appl. Phys. A, 2014, Vol. 114, Pp.45–50.
56. Zywietz U., Evlyukhin A.B., Reinhardt C., Chichkov B.N. Laser printing of silicon nanoparticles with resonant optical electric and magnetic responses // Nature Comm., 2014, 5:3402 doi:10.1038/ncomms4402.
57. Иногамов Н.А., Жаховский В.В., Хохлов В.А., Струеобразование при отрыве металлической пленки от подложки в результате воздействия фемтосекундного лазерного импульса // ЖЭТФ, 2015, Т.147, N.1, С.20–56.
58. Ivanov D.S., Kuznetsov A.I, Lipp V.P., Rethfeld B., Chichkov B.N., Garcia M.E., Schulz W. Short laser pulse nanostructuring of metals: direct comparison of molecular dynamics modeling and experiment // Appl. Phys. A, 2013, Vol.111, Pp. 675–687.
59. Ivanov D.S., Rethfeld B.C., O'Connor G.M., Glynn T.J., Volkov A.N., Zhigilei L.V. The mechanism of nanobump formation in femtosecond pulse laser nanostructuring of thin metal films // Appl. Phys. A, 2008, Vol.92, P.791.

Статья поступила в редакцию 25 ноября 2014 г.