

Прочностные свойства расплава алюминия в условиях экстремально высоких темпов растяжения при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов

М. Б. Агранат, С. И. Анисимов*, С. И. Ашитков, В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов*¹⁾, П. С. Комаров, А. В. Овчинников, В. Е. Фортвов, В. А. Хохлов*, В. В. Шепелев[△]

Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

**Институт теоретической физики им. Л.Д. Ландау РАН, 142432 Черногоровка, Россия*

△Институт автоматизации проектирования РАН, 123056 Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 марта 2010 г.

Проведены экспериментальные и теоретические исследования динамики плавления поверхностного нанослоя и формирования тепловых и ударных волн в металлах под действием фемтосекундного лазера. Реализована новая экспериментально-вычислительная методика определения параметров ударных волн, возбуждаемых в металлических пленках с помощью лазера. В результате получены данные о прочностных свойствах конденсированной фазы в алюминиевых пленках в условиях рекордно высокого темпа деформации ($\dot{V}/V \sim 10^9 \text{ с}^{-1}$) под действием лазерно-индуцированной ударной волны.

В последние годы много внимания уделяется изучению физических процессов, возникающих при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов (ФЛИ) умеренной интенсивности $10^{11} - 10^{13} \text{ Вт/см}^2$ на конденсированные среды. Наряду с технологическими аспектами прецизионной обработки материалов, большой интерес представляют исследования термодинамических и прочностных характеристик поверхностного нанослоя вещества при экстремально коротких импульсных нагрузках. Одной из информативных оптических методик, позволяющей с высокой точностью следить за высокоскоростной деформацией вещества, обусловленной воздействием ФЛИ, является фемтосекундная интерференционная микроскопия (ФИМ) [1–3]. Соответствующие пространственно-временные диапазоны измерений составляют $\sim 1-1000 \text{ нм}$ и $0.1-1000 \text{ пс}$. В этом отношении измерения с применением ФИМ миниатюризируют более крупномасштабные и более медленные методики VISAR и ORVIS, имеющие исключительное значение для диагностики импульсных явлений в микросекундном и наносекундном временном диапазоне [4–6]; Doppler Velocity Interferometer System for Any Reflector (VISAR), Optically Recording Velocity Interferometer System (ORVIS). С помощью систем VISAR или ORVIS исследуют динамику акустических возмущений внутри пластин толщиной от десятков микрон до миллиметров.

С ФЛИ и пленками субмикронной толщины связаны чрезвычайно высокие темпы деформации материала $\dot{V}/V \sim 10^9 - 10^{10} \text{ с}^{-1}$. Большой интерес представляет диагностика процессов, инициированных ФЛИ в металлах. С этой целью были проведены описанные ниже эксперименты и численное моделирование воздействия ФЛИ на тонкие пленки алюминия (Al). С помощью методики ФИМ измерялась зависимость смещения тыльной (противоположной нагреваемой) границы тонкой пленки от времени $\Delta x(t)$. Это смещение вызвано действием акустической волны, создаваемой в результате нагрева фронтальной поверхности с помощью ФЛИ. Далее посредством двухтемпературного (2T) гидродинамического (2T-гд) и молекулярно-динамического (МД) численного моделирования по функции $\Delta x(t)$ восстанавливались события, происходящие внутри облученной пленки.

В настоящей работе источником ФЛИ являлась титан-сапфировая лазерная система, генерирующая импульсы с энергией до 2 мДж длительностью $\tau_{FWHM} = 40 \text{ фс}$ на длине волны 800 нм. В качестве мишеней использовались алюминиевые пленки различной толщины, нанесенные методом магнетронного напыления на тонкие стеклянные подложки толщиной 150 мкм. Нагревающий импульс (длина волны $\lambda_{\text{pump}} = 800 \text{ нм}$), генерирующий акустическую волну в образце, фокусировался на границу металл – стекло через тонкую (150 мкм) стеклянную подложку по нормали к поверхности мишени (рис.1) линзой с фокусным расстоянием 150 мм. При измерении зависимости $\Delta x(t)$ с помощью

¹⁾e-mail: nailinogamov@googlemail.com

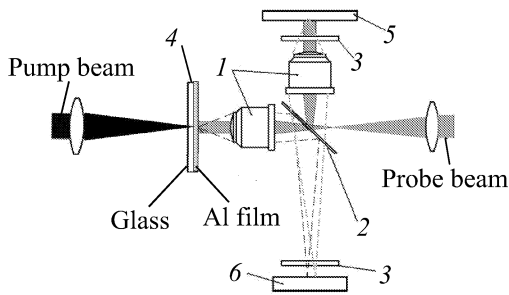


Рис.1. Схема эксперимента: 1 – микрообъективы; 2 – делитель пучка; 3 – светофильтры; 4 – мишень; 5 – опорное зеркало; 6 – ПЗС матрица

ФИМ используется интерферометр Майкельсона [2]. Зондирование осуществлялось импульсами второй гармоники лазера на длине волны $\lambda_{\text{probe}} = 400$ нм. Время между нагревающим и зондирующим импульсами изменялось с помощью оптической линии задержки. Высокая точность измерения фазы отраженной волны зондирующего излучения (погрешность по фазе $\approx \pi/200$) достигалась путем применения алгоритма двумерного фурье-анализа интерферограмм и процедуры нормировки изображений [1, 2, 7]. Оптическая схема, методики измерений и анализа интерферограмм описаны в работах [1–3]. С помощью трехкоординатного микроманипулятора после каждого воздействия нагревающего импульса мишень передвигалась на новое место. При этом точность позиционирования тыльной поверхности мишени относительно объектной плоскости микрообъектива интерферометра составляла не более 1–2 мкм и контролировалась по контрасту интерференционных полос.

Для создания необходимого давления в акустической волне и предотвращения развития нелинейных процессов самофокусировки и поглощения в стекле [8], приводящих к искажению пространственного распределения излучения в фокусе и препятствующих росту давления с ростом энергии нагревающего импульса, длительность импульсов была увеличена до $\tau_{\text{FWHM}} = 150$ фс. Временное разрешение измерений при данной длительности равнялось примерно 200 фс. В проводимых экспериментах пространственное распределение нагревающего излучения в фокусе соответствовало гауссову с диаметром 80 мкм по уровню $1/e$, что существенно превышало толщину d используемых металлических пленок 350 и 1200 нм. Это обеспечивает правомерность использования одномерного приближения при численном моделировании исследуемых процессов.

Представим картину поглощения лазерного излучения, нагрева металла и генерации акустического сигнала. Поглощение ФЛИ сильно перегревает электронную подсистему [3, 9]. Нагревы значительные, соответственно за время действия ФЛИ происходит частичное снятие вырождения, поэтому время электрон-электронной релаксации мало: $t_{ee} \sim 10$ фс. Тогда на промежутке времен $t_{ee} < t < t_{eq}$ возникает $2T$ ситуация. При наших флюенсах время релаксации к однотемпературному состоянию равно $t_{eq} \sim 3\text{--}4$ пс. Слой прогрева формируется в основном на $2T$ стадии, когда электронная тепловая волна распространяется из скин-слоя $\delta_{\text{skin}} \approx 15$ нм со сверхзвуковой скоростью. За промежуток времени t_{eq} поглощенное тепло проникает на расстояние $d_T \approx 100\text{--}120$ нм. При этом средняя скорость равна 30 км/с, что почти в пять раз превышает скорость звука. При $t > t_{eq}$ тепловая волна переходит в обычный дозвуковой режим распространения с малой скоростью тепловой волны.

В использованном для моделирования $2T$ -гд коде [3] используется широкодиапазонное уравнение состояния Al [5] и данные сайта [5], поддерживаемого Хищенко, Левашовым, Ломоносовым и др. Основными параметрами, характеризующими $2T$ состояние, являются коэффициент электрон-ионного теплообмена α и электронная теплопроводность κ_e [3]. Для Al коэффициент $\alpha \approx 3.6 \cdot 10^{18}$ эрг·с⁻¹·см⁻³·К⁻¹ известен хорошо [10]. При заданном поглощенном флюенсе F_{abs} глубина прогрева d_T и толщина расплава d_m определяются теплопроводностью κ_e , поскольку, как сказано, коэффициент α фиксирован.

Функция $\kappa_e(T_e, T_i, \rho)$ бралась по модели [11], которая обеспечивает наилучшее на сегодня согласие с опытными данными по сравнению с другими моделями. Как будет видно ниже, $2T$ -гд расчеты с κ_e по [11] хорошо согласуются с представленными в данной работе экспериментами. При заданном поглощенном флюенсе F_{abs} от глубины прогрева d_T зависят амплитуда и протяженность показанной на рис.2 волны сжатия p_+ – если d_T больше, то амплитуда волны меньше, а протяженность волны больше. В свою очередь, от амплитуды p_+ зависит измеряемая в опытах скорость u , с которой тыльная граница начинает свое движение при выходе на нее акустического сигнала, сформированного на $2T$ стадии.

Известно [12], что, во-первых, быстрый нагрев посредством ФЛИ является причиной резкого повышения давления и возникновения акустических волн, распространяющихся из слоя нагрева. Во-вторых, с отражением этих волн от границ пленки связаны смещения границ. В данной работе рассматривается сме-

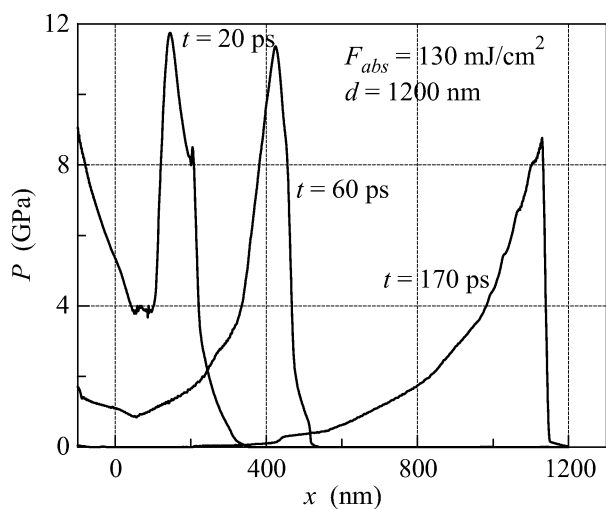


Рис.2. Уход волны сжатия p_+ из слоя нагрева d_T около контакта $x \approx 0$ и распространение в сторону тыльной границы $x = d$. Ударная волна в стекле $x < 0$ не показана, поскольку нас интересует, во-первых, эволюция волны p_+ в пленке и, во-вторых, воздействие этой волны на тыльную сторону

чение $\Delta x(t)$ тыльной стороны. Необходимо подчеркнуть, что профили волн в рассматриваемой в данной работе ситуации с пленкой Al на стекле качественно отличаются от случая, исследованного в [12] со свободной фольгой. В последнем случае нет стекла – обе границы слоя алюминия граничат с воздухом при атмосферном давлении.

На рис.2 показано распространение волны p_+ в пленке. Время t отсчитывается от максимума интенсивности греющего ФЛИ, который аппроксимируется функцией Гаусса $I(t) = I_{max} \exp(-t^2/\tau_L^2)$, $\tau_L = 90$ фс, $\tau_{FWHM} = 150$ фс. Отметим, что в $2T$ -гд расчетах пренебрегается малой фононной теплопроводностью стекла. Из-за параллельности характеристик на плоскости x, t в линейной акустике бегущая волна p_+ имеет вид $p(x - c_s t)$ с неизменной во времени формой. В нашем случае волна умеренно нелинейная – в отличие от линейной акустики характеристики фокусируются (сближаются) на участке подъема давления и дефокусируются (расходятся) на участке спада. Вследствие этого волна сжатия опрокидывается – формируется скачок давления, и, кроме того, максимальное значение p снижается со временем, а задний участок растягивается по оси x .

“Отклик” тыльной поверхности на отражение от нее волны p_+ , показанной на рис.2, представлен на рис.3. В линейной акустике функции $p(x - c_s t)$ и $u(t) = (d/dt)\Delta x(t)$ подобны при соответствующем масштабировании осей t и x . На рис.3 пленка име-

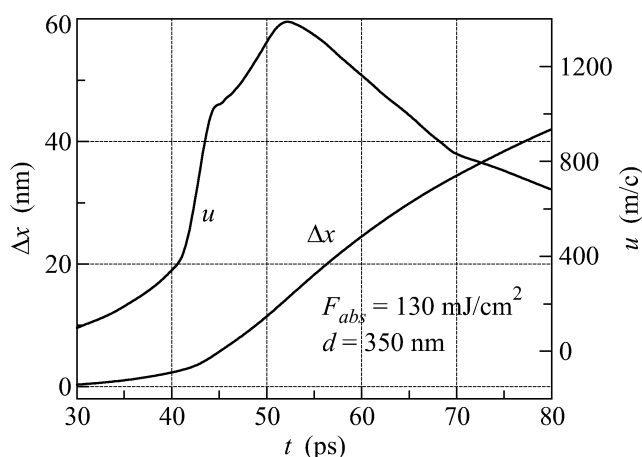


Рис.3. Смещение $\Delta x(t)$ и скорость смещения $u(t)$ тыльной границы в случае пленки с толщиной $d = 350$ нм. Максимуму скорости соответствует перегиб зависимости $\Delta x(t)$

ет толщину $d = 350$ нм, а не 1200 нм, как на рис.2. Волна сжатия p_+ , вызывающая смещение $\Delta x(t)$ на рис.3, имеет примерно такой же профиль, какой имеет волна на рис.2 на момент $t = 20$ пс. Соответственно профиль $p(x, t = 20$ пс) на рис.2 и профиль $u(t)$ на рис.3 подобны друг другу. Для иллюстрации связей ФЛИ \rightarrow волна сжатия $p(x, t) \rightarrow$ смещение $\Delta x(t)$ выбрана пленка меньшей толщины, поскольку по мере распространения структура волны $p(x, t)$ упрощается. Действительно, из-за сближения звуковых характеристик постепенно ослабляется тепловой предвестник перед скачком давления p и постепенно пропадает участок роста p между максимумом p и скачком, сравни профили на рис.2. Забегая вперед, отметим, что в эксперименте с пленкой $d = 350$ нм предвестник не фиксируется. Это может быть связано с его слабостью или с недостаточной точностью измерений при малых смещениях.

Как известно [4, 6, 12, 13], волна сжатия p_+ с $p > 0$, изображенная на рис.2, после отражения от свободной границы $x = d$ трансформируется в волну растяжения p_- с отрицательным давлением $p < 0$, бегущую в левую сторону. Распространение отраженной волны от тыльной поверхности в сторону слоя расплава представлено на рис.4; параметры МД расчета: поглощенная энергия $F_{abs} = 130$ мДж/см², толщина пленки $d = 1200$ нм. Огибающая “envelope” на этом рисунке следует по максимумам растяжения в бегущей отраженной волне. Величина максимального растяжения постепенно растет при удалении волны от границы и выходит на насыщение на некотором расстоянии от границы. Такое поведение связано, во-первых, с тем, что на свободной границе

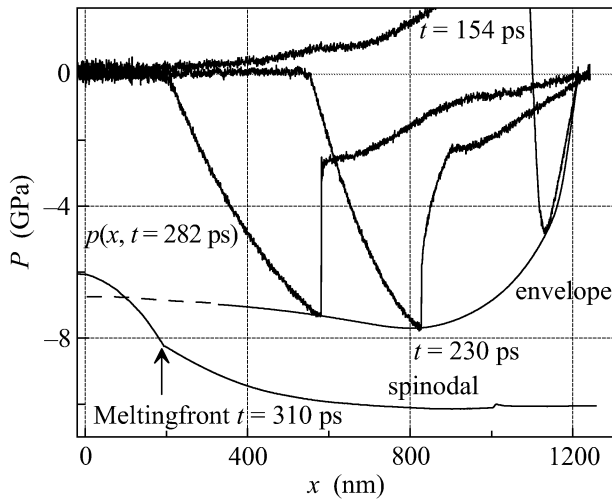


Рис.4. Соотношение между спинопальной прочностью $p(x)$ неоднородно нагретой пленки Al “spinodal” и огибающей волны $p(x,t)$ “envelope”. Идея метода локации фронта плавления основана, во-первых, на существенной разнице в прочностях твердой и жидкой фаз и, во-вторых, на том, что при распространении волны амплитуда растягивающего напряжения меняется медленно. Метод требует такой настройки амплитуды волны, чтобы она попала между порогами нуклеации в твердой и жидкой фазах, см. текст

$x = x_{\text{rear}}(t)$ выполняется краевое условие на давление $p(x = x_{\text{rear}}(t), t) = 0$. Во-вторых, из-за конечной ширины волны p_+ (см. рис.2) насыщение достигается на расстоянии порядка ширины волны p_+ .

Волна отрицательного давления p_- на рис.4, как и волна p_+ на рис.2 является умеренно нелинейной – при ее распространении проявляются эффекты фокусировки и дефокусировки характеристик. Из-за этого амплитуда минимума давления на рис.4 медленно убывает по абсолютной величине при движении (после прохождения насыщения). Кроме того, левая сторона волны растягивается, а правая становится круче – сравни профили волн на рис.4. Отметим, что левая сторона отраженной волны является образом скачка на волне сжатия p_+ на рис.2, а правая сторона представляет волну разрежения на профиле p_+ . Как видим, после отражения их характер относительно фокусировки/дефокусировки характеристик меняется. Правая сторона отраженной волны p_- опрокидывается и образует скачок (ударную волну), сравни профили на рис.4. Условия на таком скачке соответствуют продолжению адиабаты Гюгонио за бинадаль в метастабильную область. Скачок движется быстрее характеристик. Поэтому с течением времени глубина “ям” по давлению на рис.4 уменьшается.

В линейной акустике амплитуда волны p_- после насыщения пропорциональна амплитуде волны p_+ . Сравним случаи с разными амплитудами p_+ . При достаточно сильной волне p_+ отрицательное давление p_- превосходит прочность материала σ_{str} . Тогда происходит откол с тыльной стороны. Ясно, что это явление пороговое по амплитуде p_+ или (эквивалентно) по p_- . На пороге толщина оторвавшегося слоя (откольный слой) d_{sp} определяется глубиной, на которой происходит обсуждавшееся выше насыщение. Эта глубина соответствует минимуму на огибающей на рис.4.

Толщина d_{sp} убывает по мере увеличения амплитуды p_+ выше порога откола. Тогда как ниже порога откол отсутствует. Сказанное относительно отсутствия откола ниже порога относится к однородному слою с не зависящей от координаты x прочностью σ_{str} . Необычная ситуация возникает в нашем случае с пленкой Al, прогреваемой через стекло. При этом образуется горячий слой Al с толщиной d_T возле границы со стеклом. Важно, что прочность σ_{str} снижается с ростом температуры [4, 6]. Оценку прочности можно получить с помощью спинопальной кривой $p_{spin}(T)$. Возьмем $p_{spin}(T)$ из литературы [5, 14, 15]. Возьмем профиль температуры $T(x,t)$ из 2T-гд расчета. Пусть время t соответствует времени прихода отраженной волны p_- в расплавленный слой. На рис.4 взято $t = 310$ пс. На больших временах порядка 10^2 пс температура меняется медленно, поэтому напишем вместо $T(x,t)$ просто $T(x)$. Вычислим функцию $\sigma(x) = p_{spin}(T(x))$. Она показана на рис.4 – это кривая с меткой “spinodal”.

Сравним функции от x с пометками “spinodal” и “envelope” на рис.4. Как видим, волна, допороговая относительно холодной твердой фазы, оказывается запороговой для довольно горячего расплава Al. В этом заключается необычность рассматриваемой ситуации. При этом, во-первых, откол в твердой фазе заменяется на кавитацию в расплаве, во-вторых, аномально большой оказывается толщина откольного слоя. Действительно, теперь максимальная толщина d_{sp} определяется не точкой насыщения на рис.4, а расстоянием до нагретого слоя. Понятно, что это расстояние может быть велико для толстых пленок Al. Подчеркнем, что в ситуации с глубинной локацией для оценки прочности расплава неприменима стандартная линейная формула $\sigma_{lin} = \rho c_s \Delta u / 2$, где Δu – разность скоростей в максимуме и минимуме зависимости $u(t)$, пример которой показан на рис.3. Эта формула работает, если откол происходит на участке нарастания амплитуды растягивающего напряжения в среде. При локации величина σ_{lin} дает оценку

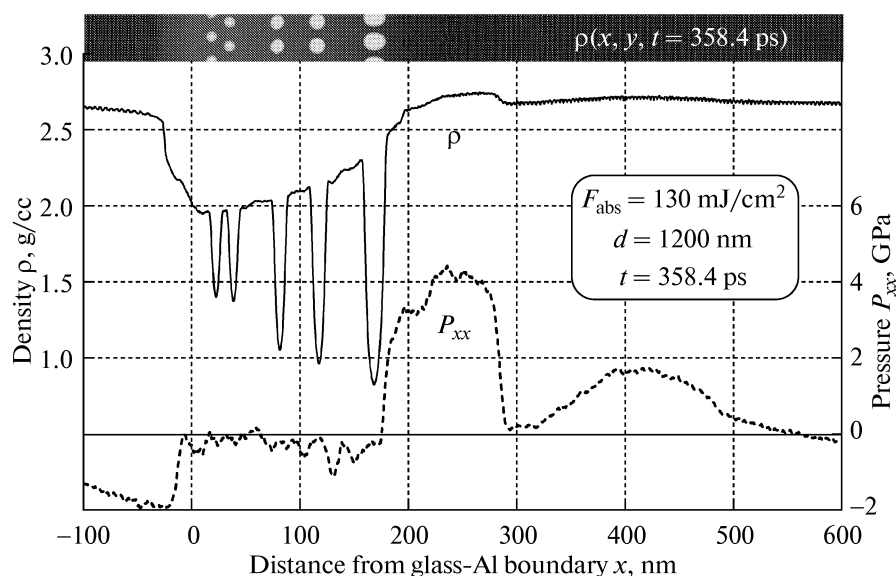


Рис.5. Кавитация в расплаве Al под действием растягивающих напряжений, принесенных в слой расплава волной p_- ; $t = 359$ пс, ρ – плотность, усредненная по поперечному сечению y, z . Провалы в ρ связаны с крупными пузырями

напряжения, которое выдержал холодный кристалл, пропустивший через себя волну p_- , см. рис.4.

Расчет волны p_- , показанный на рис.4, выполнен с помощью молекулярной динамики (МД) на ГЦК кристалле Al, находящемся в равновесии ($p = 0$) при комнатной температуре до воздействия ФЛИ, см. [12]. Кристалл ориентирован в направлении плотной упаковки 111 вдоль оси гидродинамического движения x . Мощность E_{ei} , передаваемая от горячих электронов ионам на короткой $2T$ стадии, находится с помощью $2T$ -гд кода. Она используется при моделировании нагрева за время релаксации t_{eq} в МД программе. Сильным преимуществом МД подхода является то, что таким образом удастся избежать неопределенностей, связанных с гидродинамическим описанием метастабильного распада при $p < 0$ в $2T$ -гд коде.

На рис.5 показано распределение плотности через 10 пс после начала кавитации в расплаве. В рассмотренном случае амплитуда растягивающей волны и профиль прочности расплава таковы, что происходит вспенивание жидкого Al во всем слое расплава. Здесь имеет место удивительное явление распространения фронта нуклеации налево с большой фазовой скоростью. Это связано с ростом температуры (снижение прочности) налево по оси x , компенсирующим уменьшение амплитуды отрицательного давления. Профиль прочности $\sigma(x)$, как сказано выше, определяется распределением температуры. Представление об этом профиле дает кривая “spinodal” на рис.4. Отметим, что штриховая часть кривой “envelope” на рис.4

показывает продолжение огибающей в случае, если нуклеации нет. При наличии кавитации амплитуда напряжений, вызванных растяжением, уменьшается до нуля.

Вследствие резкого уменьшения напряжений в зоне кавитации формируется акустический сигнал, называемый откольным импульсом. Этот сигнал распространяется от зоны кавитации к тыльной границе. Стрелкой вверх на сплошной кривой на рис.6 выделен момент выхода откольного импульса на

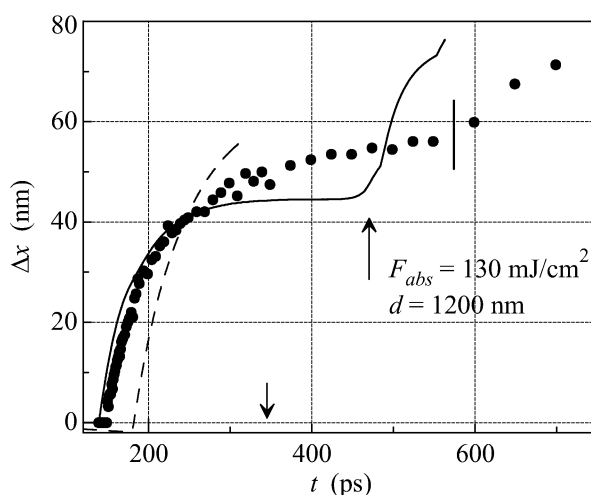


Рис.6. Сравнение МД (сплошная кривая) и $2T$ -гд (штриховая кривая) расчетов с экспериментом (точки)

тыльную границу. Указанная кривая получена путем МД моделирования. Стрелкой вниз на рис.6

отмечен момент начала нуклеации, показанной на рис.5. Профиль акустической волны, соответствующей откольному импульсу, осложнен отражением от фронта плавления. На профиль влияет как отражение идущей влево волны p_- (рис.4), так и преломление на фронте плавления откольного импульса, распространяющегося изнутри жидкого слоя направо. С этим связано появление бугра p_{xx} при $x \sim 250$ нм на рис.5. К сожалению, на рис.6 МД данные хуже согласуются с экспериментом на далеких временах, прошедших после выхода сигнала на тыльную границу. Это может быть связано с электронной теплопроводностью, не учтенной в данной версии МД кода. Соответственно на далеких временах температура жидкой фазы в МД выше, чем в 2Т-гд. Кроме того, возможно некоторое влияние на позднюю эволюцию оказывает нагрев стекла из-за частичного поглощения ФЛИ в стекле. По времени прибытия экспериментальный сигнал, отмеченный черточкой на рис.6, похож на разрыв возле контакта или на контакте стекло – Al.

На рис.7 представлено сравнение теории с экспериментом для двух толщин (350 и 1200 нм) пленки Al

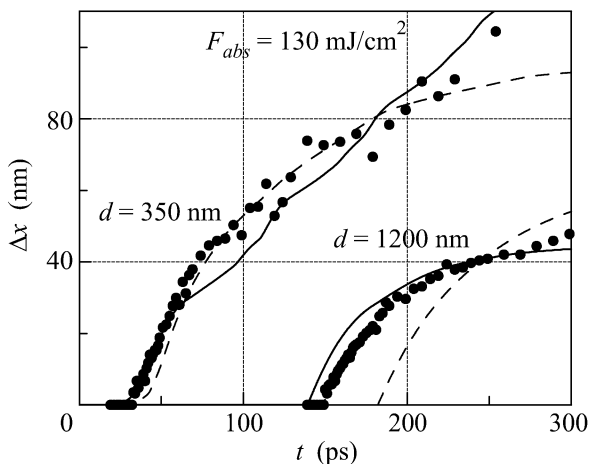


Рис.7. Сопоставление теории и опытов. Сплошные кривые – МД, штриховые – 2Т-гд, точки – эксперимент. При $d = 350$ нм в МД расчете нуклеация начинается в момент $t = 82$ пс, волна, отраженная от фронта плавления, и откольный импульс выходят на тыльную границу в $t = 92$ пс и $t = 110$ пс

на стекле. Условия фокусировки и энергия ФЛИ (64 мкДж) были одинаковыми. Аналогичные опыты, но без сопоставления с теорией, выполнены в [16] для никеля. В экспериментальных данных начало отсчета времени t_{exp} для пленок разных толщин одинаково. К сожалению, неизвестен момент прихода греющего ФЛИ на границу стекло – Al относительно этого начала отсчета. Поэтому на рисунках 6 и 7 время t_{exp}

сдвинуто так, чтобы совпадали участки до максимума скорости в опыте и в МД расчете для наиболее тонкой пленки с толщиной $d = 350$ нм.

Видим, что в 2Т-гд волна сжатия p_+ движется медленнее (см. рис.7). Анализ связывает растущее с толщиной d отставание 2Т-гд сигнала с уменьшенной скоростью звука в широкодиапазонном уравнении состояния, использованном при 2Т-гд расчетах. Дело в том, что в 2Т-гд твердая среда описывается в пластическом пределе, что справедливо только выше динамического предела текучести σ_{el} [4–6]. В областях течения, где напряжения ниже этого предела, необходим учет упругости. Имеются феноменологические упруго-пластические модели, описывающие формирование упругого предвестника перед пластической ударной волной [4]. Для их применения в нашем диапазоне ультравысоких темпов деформации \dot{V}/V требуется большая подготовительная работа с обработкой МД данных и/или эксперимента для извлечения из них феноменологических коэффициентов, входящих в упруго-пластические модели. Это дело будущего. Подчеркнем, что из приведенных выше МД данных и эксперимента следует вывод о том, что Al остается в упругом состоянии при достаточно высоких давлениях, на порядок превосходящих значения σ_{el} , известные из опытов при меньших темпах \dot{V}/V [4].

Выше показано, что МД с ЕАМ (embedded atom method) потенциалом [12] хорошо согласуется с экспериментом по скорости распространения волны p_+ . На

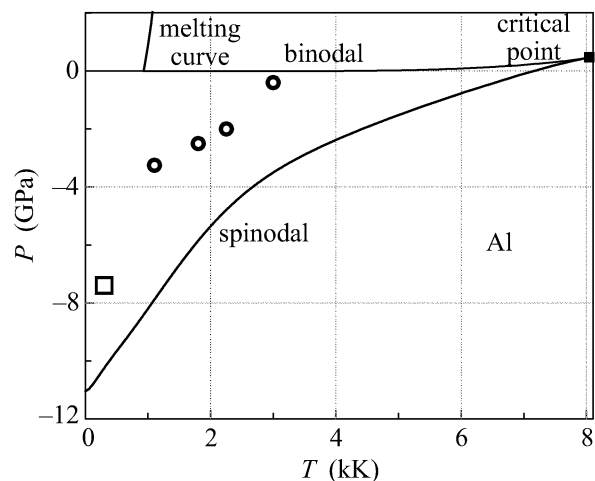


Рис.8. Расчетная прочность жидкой и твердой (по направлению 110) фаз Al при растяжении. Кривые плавления, сосуществования и спинодаль взяты согласно [5, 14, 15]

рис.8 представлены МД данные по прочности расплава Al. Четыре точки относятся к четырем “вспыш-

