Письма в ЖЭТФ, том 103, вып. 8, с. 611 – 616

Прочность жидкого олова в условиях предельно высоких скоростей деформации при фемтосекундном лазерном воздействии

С. И. Ашитков[1], *П. С. Комаров, А. В. Овчинников, Е. В. Струлева, М. Б. Агранат*

Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

Поступила в редакцию 14 октября 2015 г.

После переработки 29 февраля 2016 г.

В работе представлены результаты исследований процесса разрушения жидкого олова при предельно высокой скорости деформации, полученной с помощью фемтосекундных лазерных импульсов. Экспериментально определены величины порогов абляции и кавитации, а также растягивающих напряжений, приводящих к разрушению жидкого олова при скорости деформации $\sim 10^9\,\text{с}^{-1}$.

DOI: 10.7868/S0370274X16080105

В последнее время изучению динамической прочности жидких металлов уделяется повышенное внимание. Это связано с перспективами использования металлов в качестве теплоносителей в импульсных энергетических установках, разработкой лазерных технологий обработки материалов, получения наночастиц и т.д. Фундаментальный интерес обусловлен изучением физики метастабильных состояний и особенностей поведения конденсированного вещества вблизи предела теоретической прочности [1–3], что реализуется при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов (ФЛИ). При отрицательном давлении жидкости, включая расплавы металлов, находятся в метастабильном состоянии [4–6], распад которого при разрушении происходит в результате кавитационного процесса образования, роста и слияния зародышей паровой фазы. Поскольку высокоскоростное разрушение представляет собой кинетический процесс и не происходит мгновенно, динамическая прочность конденсированного вещества зависит от скорости деформации. В отличие от металлов в твердом состоянии, для которых имеется обширный материал по сопротивлению деформации и разрушению в широком диапазоне температур и длительностей нагрузок [1, 7], экспериментов по измерению динамической прочности жидких металлов крайне мало [8–15].

В настоящей работе впервые измерена динамическая прочность жидкого олова в пикосекундном диапазоне длительности нагрузки вблизи предела теоретической прочности путем нагрева вещества фемтосекундными лазерными импульсами. Недавно в работе [8] были получены данные по динамической прочности жидкого олова при значительно более низкой скорости деформации ($\sim 10^5\,\text{с}^{-1}$) абсолютно другим методом – методом плоского удара. Таким образом, настоящая работа позволит экспериментально определить характер роста динамической прочности расплава олова при радикальном увеличении скорости деформации от 10^5 до $10^9\,\text{с}^{-1}$. Приведенные данные могут представлять интерес для построения кинетических моделей разрушения расплавов, а также для задач прогнозирования кавитации в жидких металлах, актуальных для современной энергетики.

Нагрев металла фемтосекундным лазерным импульсом с плотностью энергии $F \sim 1\,\text{Дж/см}^2$ первоначально переводит его в двухтемпературное состояние с горячей электронной и холодной ионной подсистемами. После электрон-ионной термализации и диффузии тепла вглубь происходит объемное плавление перегретого слоя, а также формируется профиль температуры и давления. Затем в результате разгрузки вблизи поверхности возникают сильные растягивающие напряжения, максимум которых находится на глубине нескольких десятков нанометров. Вблизи абляционного порога F_a это напряжение инициирует кавитационное разрушение в расплаве с последующим отрывом и разлетом (при $F > F_a$) части жидкого слоя в виде откольной пластины (термомеханическая откольная абляция) [2, 16, 17]. Динамическая прочность расплава, как и для твердых тел, в данном случае определяется методом характеристик путем измерения волнового профиля скорости поверхности как функции времени [8–10]. В настоящей работе с этой целью была применена интерферометрическая методика с использованием частотно-модулированного (чирпированного) диагностического импульса [10, 18], позволяющая с пикосекундным

[1]e-mail: ashitkov11@yandex.ru

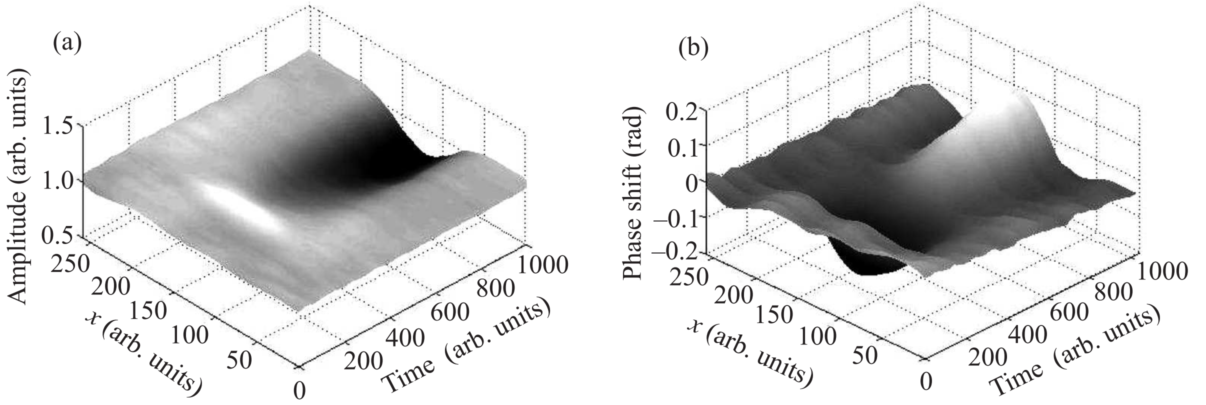

Рис. 1. Пространственно-временное распределение изменения амплитуды (a) и фазы (b) диагностического импульса в момент разлета абляционного слоя олова при величине превышения абляционного порога $F_0/F_a = 1.1$; здесь F_0 – плотность энергии ФЛИ в центре гауссова распределения

разрешением осуществлять регистрацию динамики движения абляционного слоя.

Источником излучения являлась фемтосекундная титан-сапфировая лазерная система. Нагрев мишени осуществлялся импульсами на длине волны 795 нм длительностью 40 фс p-поляризации под углом падения $\vartheta = 60°$. Пространственное распределение плотности энергии излучения в фокальном пятне соответствовало гауссову с радиусом $r_0 \approx 30$ мкм по уровню e^{-1}.

В качестве экспериментальных образцов использовались пленки олова толщиной 0.5 мкм, нанесенные на полированные кремниевые подложки методом магнетронного распыления.

Часть чирпированного импульса длительностью 300 пс с шириной спектра 40 нм и центральной длиной волны $\lambda_0 = 795$ нм отводилась из лазерного тракта перед компрессором и использовалась в качестве зондирующего излучения. Для диагностики применялся интерферометр Майкельсона, совмещенный с дифракционным спектрометром. Используемая оптическая схема обеспечивала непрерывную регистрацию динамики процесса во временном интервале $\Delta t = (0{-}200)$ пс с временным разрешением $\delta t \approx 2$ пс.

Для восстановления пространственно-временных распределений индуцированных изменений амплитуды $\Delta A(x,t)$ и фазы $\Delta\varphi(x,t)$ диагностической волны, отраженной от мишени в области взаимодействия, применялся фурье-анализ с процедурой сравнения интерферограмм [18, 19]. При этом точности их измерения составляли $\delta A/A_0 \approx (1{-}2)$ % и $\delta\varphi \approx \approx 0.02$ рад (последняя величина соответствует погрешности определения смещения поверхности на уровне $\delta z \approx (1{-}2)$ нм).

На рис. 1 приведены восстановленные с помощью фурье-анализа интерферограмм распределения $\Delta A(x,t)$ и $\Delta\varphi(x,t)$ после воздействия ФЛИ с плотностью энергии выше порога абляции.

Для оценки температуры поверхностного слоя в условиях эксперимента были измерены значение порога абляции F_a и глубина кратера h. Величина F_a по падающему потоку определялась из зависимости размера кратера от энергии лазерного импульса [20]. Она составила $F_a \approx 30 \pm 5$ мДж/см^2. На рис. 2 приведен профиль абляционного кратера, измерен-

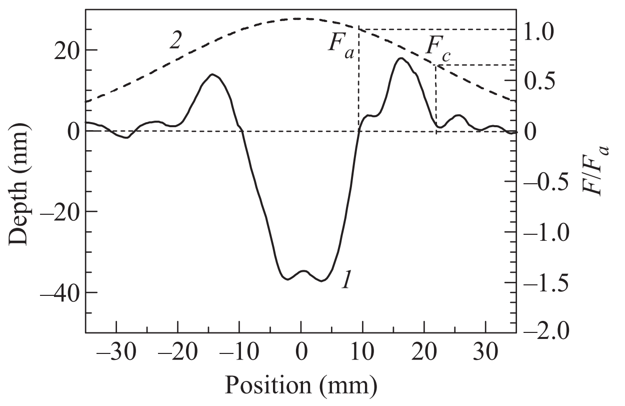

Рис. 2. Профиль кратера абляции на поверхности олова после воздействия ФЛИ с $\tau_L = 40$ фс и $F_0/F_a = 1.1$ (кривая *1*); нормированное на F_a пространственное распределение плотности энергии в фокальном пятне (кривая *2*)

ный интерферометрическим методом. При превышении порога $F_0/F_a \approx 1.1$ глубина в его центре достигала $h \approx 40$ нм.

Оценим грубо среднюю температуру $\bar{T}$ нагретого слоя толщиной d_T после выравнивания электронной и ионной температур из соотношения

$$\frac{(1-R_L)F}{d_T} = \rho_0 C(\bar{T} - T_0) + H_m. \qquad (1)$$

Здесь плотность, теплоемкость и удельная теплота плавления олова равны, соответственно, $\rho_0 = 7.3\,\text{г/см}^3$, $C = 242\,\text{Дж/кГ}\cdot\text{К}$, $H_m = 44.5\,\text{Дж/моль}$ [21]; коэффициент отражения излучения накачки $R_L = 0.7$ [22]; $T_0 = 300\,\text{К}$ – начальная температура образца. Примем во внимание, что согласно работам [16, 17, 23] вблизи порога F_a глубина прогрева мишени равна примерно удвоенной глубине абляционного кратера, т.е. $d_T \approx 80\,\text{нм}$. Тогда из (1) следует, что при $F \approx 1.1F_a$ температура слоя d_T составляет $\bar{T} \approx 1000\,\text{К}$, что в два раза превосходит температуру плавления олова в равновесных условиях $T_m = 505\,\text{К}$ [21]. При такой величине перегрева для металлов плавление носит объемный гомогенный характер [24] и происходит на временах $\sim 10^{-12}$ с, сопоставимых с временем электрон-фононного теплообмена t_{ei}.

Морфология абляционного кратера на поверхности исследуемого образца свидетельствует об откольном характере разрушения и наличии кавитации в расплаве олова после воздействия ФЛИ. Абляционный кратер (рис. 2) обладает резкими вертикальными границами и по форме заметно отличается от гауссова распределения излучения в фокальном пятне. Снаружи от границы кратера наблюдается валик (*rim*), характерный для термомеханической абляции [23]. Его внешняя граница соответствует порогу F_c возникновения кавитации в расплаве, который, как видно из рис. 2, примерно равен $F_c \approx 0.7F_a \approx 20\,\text{мДж/см}^2$.

О наличии кавитационного процесса в расплаве также свидетельствует характерный нанорельеф дна кратера (рис. 3). Основу рельефа составляют поры [23] размером не более 50 нм, образовавшиеся после разрыва и затвердевания кавитационных пузырьков. Кроме того, видны фрагменты застывшего расплава, а также отдельные сферические наночастицы размером 50–200 нм.

На рис. 4 приведены временные зависимости нормированного коэффициента отражения $R(t)/R_0$ и изменения фазы диагностической волны $\Delta\varphi(t)$, измеренные в центральной части фокального пятна при $F_0/F_a \approx 1.1$. Здесь R_0 – исходное значение коэффициента отражения поверхности образца до воздействия.

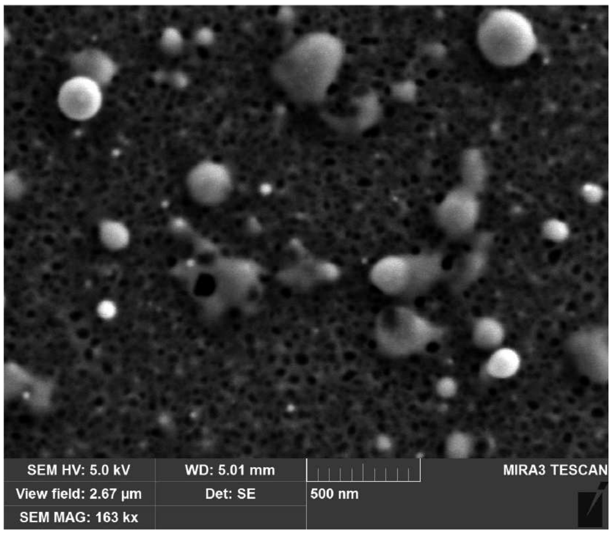

Рис. 3. Изображение фрагмента дна абляционного кратера, полученное с помощью сканирующего электронного микроскопа

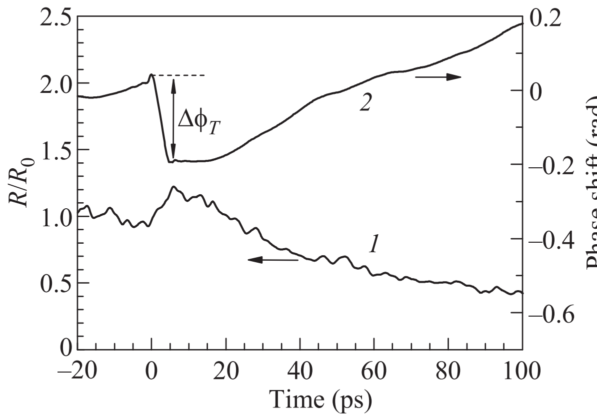

Рис. 4. Зависимости изменения коэффициента отражения (*1*) и фазы (*2*) диагностического импульса от времени при $F_0/F_a = 1.1$

Время релаксации электронов и решетки для большинства металлов, $t_{ei} \approx (2{-}5)$ пс [25], меньше характерного гидродинамического временного масштаба $t_S = d_T/c \approx (20{-}30)$ пс ($c \approx (2{-}5)$ км/с – скорость звука). Исключением является золото, у которого время релаксации заметно больше [26]. Как следует из рис. 4, для олова вблизи порога F_a характер изменения амплитуды и фазы позволяет отделить по времени двухтемпературную стадию от гидродинамической стадии движения вещества. Действительно, резкое изменение $R(t)$ и $\Delta\varphi(t)$ в течение первых 5 пс, очевидно, связано с изменением оптических свойств поверхностного слоя, вызванным нагревом решетки и ее плавлением. Согласно данным эллипсометрии [27] при плавлении олова в результате нагрева от 300 K ($\tilde{\varepsilon}_{\rm sol} \approx -10 + 45i$) до 523 K ($\tilde{\varepsilon}_{\rm liq} \approx -70 + 30i$) величина R на длине волны 750 нм увеличивается более чем на 20 %. Это хорошо коррелирует с наблюдаемым в эксперименте ростом отражения на начальной стадии процесса взаимодействия.

На больших временах (при $t \geq 10^{-11}$ с) изменения амплитуды и фазы (рис. 4) характеризуют гидродинамическую стадию абляционного процесса. Плавное уменьшение отражения связано с изменением плотности при расширении вещества. Изменение фазы на указанных временах описывает смещение границы поверхности $z(t)$, величина которого определяется из соотношения

$$z(t) = \frac{\Delta\varphi(t)\lambda}{4\pi}. \tag{2}$$

Здесь в соответствии с рис. 4 мы полагаем, что составляющая $\Delta\varphi_T(t)$, отражающая изменение оптических свойств олова при его нагреве и плавлении, изменяется в течение нескольких пикосекунд. Далее в регистрируемом временном интервале $\Delta\varphi_T(t)$ не меняется, так как кристаллизация жидкого металла происходит на временах $> 10^{-9}$ с [23].

С учетом этого на рис. 5 приведен профиль смещения $z(t)$, полученный из экспериментальной зависимости $\Delta\varphi(t)$ и выражения (2). Там же построен профиль скорости поверхности $u(t)$, полученный путем дифференцирования зависимости $z(t)$.

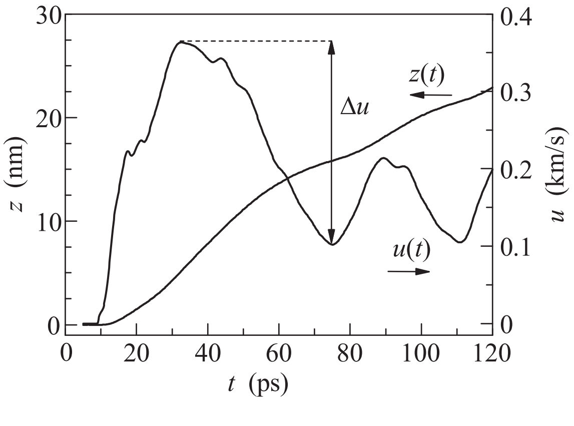

Рис. 5. Зависимости смещения $z(t)$ и скорости движения поверхности $u(t)$ абляционного слоя олова от времени при $F_0/F_a = 1.1$

Максимальная скорость поверхности, $u_{\max} \approx 0.36 \pm 0.2$ км/с, достигается на начальной стадии ускорения под действием градиента давления в слое d_T. Далее движение замедляется за счет сопротивления среды растяжению. В случае превышения величиной растягивающих напряжений прочности расплава в последнем возникает кавитационное разрушение. Релаксация напряжений при разрушении сопровождается повторным возрастанием скорости при выходе на поверхность абляционного слоя откольного импульса [1]. Далее слой движется по инерции со скоростью центра массы около 0.15 км/с с осцилляциями ± 0.05 км/с.

Величина растягивающего напряжения непосредственно перед разрушением определяется методом характеристик по декременту скорости Δu между ее максимальным значением и значением перед откольным импульсом (рис. 5). В акустическом приближении, в пренебрежении нелинейностью сжимаемости метод характеристик дает простую формулу для оценки величины откольной прочности [1, 8-10]:

$$\sigma = \rho c \Delta u/2, \tag{3}$$

где ρ и c – плотность и скорость звука в веществе соответственно. Полагая для жидкого олова при температуре $\sim 10^3$ K $c \approx 2.2 \pm 0.1$ км/с и $\rho \approx 6.6$ г/см^3 [21], с учетом измеренного значения декремента скорости $\Delta u = 0.26 \pm 0.3$ км/с получаем величину динамической прочности $\sigma = 1.9 \pm 0.3$ ГПа. Скорость деформации согласно [1] определяется выражением

$$\dot{\varepsilon} = \frac{\Delta u}{\Delta t}\frac{1}{2c} \tag{4}$$

и составляет $\dot{\varepsilon} \approx 1.3 \cdot 10^9$ с$^{-1}$. Здесь $\Delta t = t_{\min} - t_{\max}$, где $t_{\max}$, $t_{\min}$ – времена, соответствующие максимальному и минимальному значениям скорости $u(t)$. Вблизи абляционного порога глубина $L_{\rm spall}$, на которой возникают кавитация и разрушение расплава, должна соответствовать глубине образующегося после разлета кратера. Согласно [7] значение $L_{\rm spall}$ определяется по динамике разлета слоя $u(t)$ с помощью выражения $L_{\rm spall} = c\Delta t/2$. Полученное таким образом при $F_0/F_a = 1.1$ значение $L_{\rm spall} \approx 45$ нм практически совпадает с измеренной выше глубиной кратера h (см. рис. 2), что дополнительно подтверждает правильность проведенного выше рассмотрения.

На рис. 6 приведены результаты измерений динамической прочности жидкого олова разными экспериментальными методами в широком диапазоне длительности нагрузки. Измеренное в настоящей работе значение динамической прочности жидкого олова при скорости деформации $\dot{\varepsilon} \approx 10^9$ с$^{-1}$ составляет около 30 % от расчетного значения идеальной прочности олова, равного 6.8 ГПа [28].

На рисунке хорошо прослеживается тенденция увеличения динамической прочности расплава олова с ростом скорости деформации. Зависимости роста

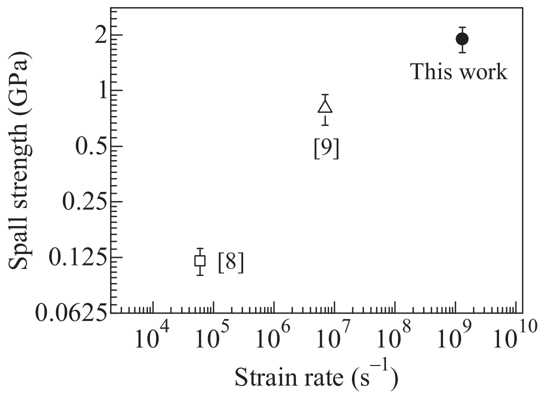

Рис. 6. Сопоставление экспериментальных данных по динамической прочности жидкого олова, полученных в настоящей работе (кружок), с имеющимися литературными данными [8, 9]

динамической прочности для ряда жидких металлов (Al, Cu, Ni, Fe, Ti, Pb) в рассматриваемом диапазоне скоростей деформации теоретически получены в работе [6]. Однако для жидкого олова такие расчетные данные нам не известны.

Таким образом, результаты проведенного исследования морфологии кратера на поверхности пленочного образца олова, образующегося при абляции после воздействия фемтосекундного лазерного импульса, свидетельствуют о термомеханическом (откольном) характере разрушения расплава из-за кавитационного процесса, возникающего под действием растягивающих напряжений. Измерены значения абляционного и кавитационного порогов. Впервые определена динамическая прочность жидкого олова, равная 1.9 ± 0.3 ГПа при скорости деформации $1.3 \cdot 10^9\,\text{с}^{-1}$. Полученные результаты позволили более чем на два порядка расширить диапазон известных экспериментальных данных по поведению жидкого олова в области высоких скоростей деформации вблизи предела теоретической прочности.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда (проект # 14-50-00124).

1. Г. И. Канель, В. Е. Фортов, С. В. Разоренов, УФН **177**, 809 (2007).
2. М. Б. Агранат, С. И. Анисимов, С. И. Ашитков, В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов, П. С. Комаров, А. В. Овчинников, В. Е. Фортов, В. А. Хохлов, В. В. Шепелев, Письма в ЖЭТФ **91**, 517 (2010).
3. С. И. Ашитков, П. С. Комаров, Е. В. Струлева, М. Б. Агранат, Г. И. Канель, Письма в ЖЭТФ **101**, 294 (2015).
4. В. П. Скрипов, *Метастабильная жидкость*, Наука, М. (1972).
5. Yu. Kuksin, G. E. Norman, V. V. Pisarev, V. V. Stegailov, and A. V. Yanilkin, Phys. Rev. B **82**, 174101 (2010).
6. A. E. Mayer and P. N. Mayer, J. Appl. Phys. **118**, 035903 (2015).
7. G. I. Kanel, Int. J. Fract. **163**, 173 (2010)
8. Г. И. Канель, А. С. Савиных, Г. В. Гаркушин, С. В. Разоренов, Письма в ЖЭТФ **102**, 615 (2015).
9. T. de Rességuier, L. Signor, A. Dragon, P. Severin, and M. Boustie, J. Appl. Phys. **102**, 073535 (2007).
10. С. И. Ашитков, П. С. Комаров, А. В. Овчинников, Е. В. Струлева, В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов, М. Б. Агранат, Квантовая электроника **44**, 535 (2014).
11. G. I. Kanel, S. V. Razorenov, A. V. Utkin, and D. E. Grady, AIP Conf. Proc. **370**, 503 (1996).
12. E. B. Zaretsky and G. I. Kanel, J. Appl. Phys. **112**, 053511 (2012).
13. E. F. Dudarev, A. B. Markov, A. E. Mayer, G. P. Bakach, A. N. Tabachenko, O. A. Kashin, G. P. Pochivalova, A. B. Skosyrskii, S. A. Kitsanov, M. F. Zhorovkov, and E. V. Yakovlev, Russ. Phys. J. **55**, 1451 (2013).
14. S. I. Ashitkov, N. A. Inogamov, P. S. Komarov, V. V. Zhakhovsky, I. I. Oleynik, M. B. Agranat, GI. Kanel, and V. E. Fortov, AIP Conf. Proc. **1464**, 120 (2012).
15. S. I. Ashitkov, P. S. Komarov, E. V. Struleva, M. B. Agranat, G. I. Kanel, and K. V. Khishchenko, J. Phys.: Conf. Ser. **653**, 012001 (2015).
16. C. Wu and L. V. Zhigilei, Appl. Phys. A **114**, 11 (2014).
17. M. E. Povarnitsyn, V. B. Fokin, and P. R. Levashov, Appl. Surf. Sci. **357**, 1150 (2015).
18. J. P. Geindre, P. Audebert, S. Rebibo, and J. C. Gauthier, Opt. Lett. **26**, 1612 (2001).
19. V. V. Temnov, K. Sokolovski-Tinten, P. Zhou, and D. Linde, J. Opt. Soc. Am. B **23**, 1954 (2006).
20. J. M. Liu, Opt. Lett. **7**, 196 (1982).
21. *Физические величины.* Справочник, под ред. И. С. Григорьева, Е. З. Мейлихова, Энергоатомиздат, М. (1991).
22. А. И. Головашкин и Г. П. Мотулевич, ЖЭТФ **19**, 460 (1964).
23. С. И. Ашитков, Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский, Ю. Н. Эмиров, М. Б. Агранат, И. И. Олейник, С. И. Анисимов, В. Е. Фортов, Письма в ЖЭТФ **95**, 192 (2012).
24. Б. Ретфельд, В. В. Темнов, К. Соколовски-Тинтен, П. Цу, Д. фон дер Линде, С. И. Анисимов, С. И. Ашитков, М. Б. Агранат, Оптический журнал **71**, 18 (2004).
25. J. Hohlfeld, S.-S. Wellershoff, J. Gudde, U. Conrad, V. Jahnke, and E. Matthias, Chem. Phys. **251**, 237 (2000).

26. S. I. Ashitkov, P. S. Komarov, E. V. Struleva, A. A. Yurkevich, and M. B. Agranat, High Temperature **53**, 887 (2015).
27. D. X. Zhang, B. Shen, Y. X. Zheng, S. Y. Wang, J. B. Zhang, S. D. Yang, R. J. Zhang, L. Y. Chen, C. Z. Wang, and K. M. Ho, Appl. Phys. Lett. **104**, 121907 (2014).
28. E. Moshe, S. Eliezer, E. Dekel, Z. Henis, A. Ludmirsky, I. B. Goldberg, and D. Eliezer, J. Appl. Phys. **86**, 4242 (1999).