

Дифракция на микропузырьке и морфология поверхности кремния после облучения через глицерин парой фемтосекундных лазерных импульсов

Н. А. Иногамов^{+*×1)}, С. А. Ромашевский^{*}, А. И. Игнатов^{+°}, В. В. Жаховский^{+*}, В. А. Хохлов[×],
Е. М. Еганова[∇], Е. А. Першина[∇], С. И. Ашитков^{*}

⁺Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н. Л. Духова, 127055 Москва, Россия

^{*}Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

[×]Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черногловка, Россия

[°]Национальный исследовательский Московский государственный строительный университет (НИУ МГСУ),
129337 Москва, Россия

[∇]Институт нанотехнологий микроэлектроники РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 ноября 2020 г.

После переработки 3 декабря 2020 г.

Принята к публикации 3 декабря 2020 г.

Воздействие двух последовательных лазерных импульсов на кремний, помещенный в глицерин, исследовано экспериментально и численно с помощью программ электромагнитного, гидродинамического и атомистического моделирования. Показано, что после первого импульса на поверхности образуется микропузырек в жидкости, на котором затем происходит дифракция второго импульса, ширина светового пучка которого сравнима с диаметром микропузырька. Мы рассчитали дифракционную картину и распределение интенсивности света на поверхности кремния, и оказалось, что максимальная интенсивность в дифракционных пиках может заметно превышать интенсивность на оси падающего гауссова пучка. В результате усиления интенсивности, сконцентрированной в одном ярком узком кольце вокруг микропузырька, на кремнии образуется характерная канавка, окруженная валиками. Мы продемонстрировали в молекулярно-динамическом расчете, что интенсивный нагрев в дифракционном пике вызывает плавление и вытеснение расплава от центра прогрева. Это приводит к формированию канавок с валиками, имеющими профиль, подобный измеренному в эксперименте.

DOI: 10.31857/S1234567821020026

1. Введение. Фундаментальные проблемы физики взаимодействия излучения с веществом имеют непосредственное отношение к современным технологиям электроники, оптоэлектроники, фотоники, плазмоники и т.п. (фотоны, как инструмент обработки, созидания на уровне нанометров). Разумеется, решение фундаментальной проблемы далее повышает уровень технологического развития. По тематике наша работа (оптическая нанолитография в жидкости) относится к таким разделам, как лазерная абляция в жидкости [1–4], с одной стороны, и наноструктурирование поверхности при ее острогофокусированном облучении [5–11], с другой стороны. Результаты работы представлены на рис. 1 и 2. Методика позволяет вести обработку поверхности на масштабах, которые существенно меньше длины вол-

ны в вакууме. Детали расчетов, приведших к этим рисункам, даны после вводного раздела.

В работе рассматриваются особенности взаимодействия двух фемтосекундных лазерных импульсов (ФЛИ) с поверхностью материала (кремния), погруженного в вязкую жидкость (глицерин). В отличие от облучения в газовой среде или вакууме, в жидкости при воздействии одного импульса, помимо нагрева самого приповерхностного слоя материала, происходит нагрев тонкого прилегающего слоя жидкости, что в конечном счете ведет к образованию пузырька. Данное явление хорошо известно исследователям лазерной абляции в жидкости, которую (абляцию) активно используют для выработки химически чистых наночастиц [1–4]. С одной стороны, горячий слой жидкости (диффузно перемешанный с веществом мишени) является своего рода “реактором”, в котором происходит формирование наноча-

¹⁾e-mail: nailinogamov@gmail.com

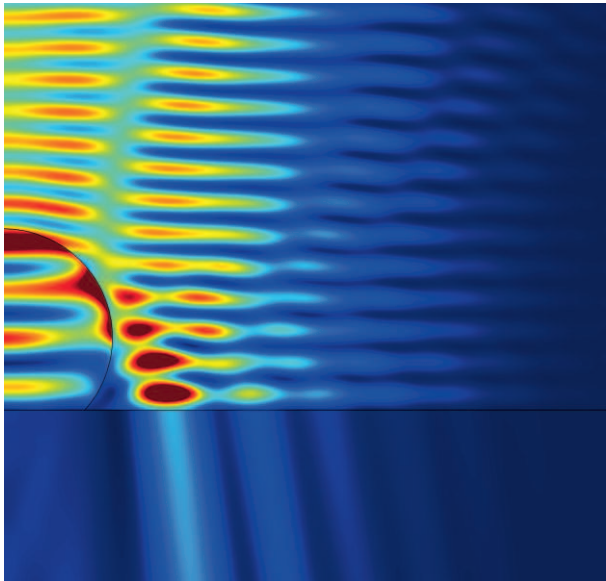


Рис. 1. (Цветной онлайн) Распределение интенсивности $I(x, z)$ электрического поля (в относительных единицах) при дифракции линейно поляризованного Гауссова пучка на пузырьке радиуса 1.2 мкм в глицерине. Пузырек в форме сферического сегмента лежит на плоской поверхности кремния, причем расстояние от центра сферы до поверхности 0.8 мкм. Гауссов пучок падает сверху (из глицерина), радиус пучка по уровню интенсивности $1/e$ составляет 3 мкм. Длина волны света в глицерине 704 нм. Поле $I(x, z)$ дается в плоскости, проходящей через центр сферы по нормали к поверхности кремния и параллельно поляризации пучка

стиц [12, 13]; пузырь образуется из горячего слоя. С другой стороны, данный пузырь является негативным фактором (по отношению к наработке наночастиц), поскольку экранирует поверхность материала от воздействия последующих импульсов.

В данной работе, напротив, анализируется явление пространственной модуляции распределения интенсивности 2-го ФЛИ на препятствии – микронном пузырьке (см. рис. 1 и 2). Таким образом, у нас пузырек – это положительный фактор. Пузырек создается в жидкости вблизи облучаемой поверхности материала 1-м импульсом [14, 15]. В результате модуляции на поверхности материала формируются круговые структуры. Они являются проекцией (отпечатком в мишени) кольцевой дифракционной картины, возникшей в результате рассеяния 2-го ФЛИ на пузырьке. Только самое яркое кольцо вносит сильные изменения в профиль поверхности, см. рис. 2.

Важно, что облучение проходит через жидкость (иначе не было бы микропузырька). Таким образом, наша задача имеет отношение к абляции в жидкости

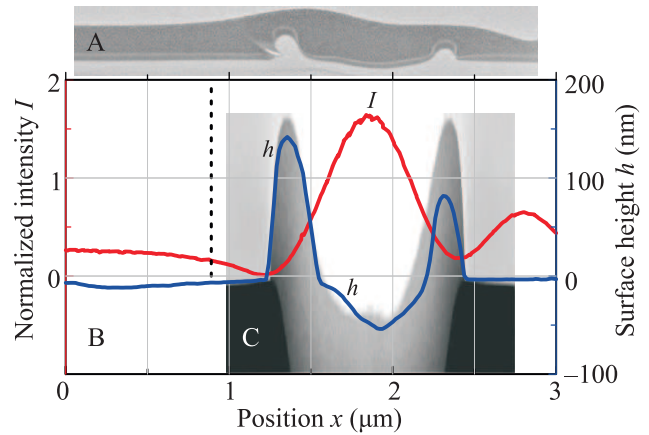


Рис. 2. (Цветной онлайн) А: Просвечивающий электронный микроскоп (ПЭМ, см. раздел 2). Изображение поперечного сечения циркулярной канавки, окруженной асимметричными внутренним и внешним валиками. Структура формируется после воздействия 2-ого ФЛИ, дифрагированного на микропузырьке. В: Распределение нормированной интенсивности $I(x, z = -20 \text{ нм})$ на глубине 20 нм под поверхностью кремния (красная кривая). Поле $I(x, z)$ в глицерине и кремнии показано на рис. 1. Максимум красной кривой относится к яркой дифракционной полосе, идущей в кремнии на рис. 1. Мы нормируем I на значение $I_G(x = 0, z = -20 \text{ нм})$, соответствующее гауссову пучку I_G в случае без пузырька. Профиль поверхности, показанной на рис. 2А (ПЭМ), представлен здесь синей кривой (это измерение с помощью атомного силового микроскопа – АСМ). Максимальная глубина циркулярной канавки составляет 50 нм, высота валиков 80–140 нм. С: МД вставка показывает распределение плотности в серых полутонах в плоскости, пересекающей канавку поперек (кривизна канавки не учитывается) – поэтому валики симметричны в МД расчете (раздел 5). Штриховая вертикаль указывает крайнюю правую точку контакта пузырька (усеченной сферы) с кремнием, см. рис. 1.

с неустрашимым формированием пузырька. Но параметры задачи, представленной на рис. 1 и 2, резко отличаются от обычных параметров абляции в жидкости [1–4]. Отличия следующие: во-первых, острая фокусировка, радиус пятна фокусировки гауссовым пучком 3 мкм; обычно пятна от сотни микрометров до миллиметра. Во-вторых, сверхмалый и долгоживущий пузырек – радиус пузырька при самом слабом нашем воздействии на порядок меньше радиуса фокального пятна.

Впервые предположения о существовании пузырька и дифракции на нем были высказаны в экспериментальной работе [14], см. также раздел 2. Данная статья подводит теоретико-доказательную базу под это предположение. Выяснено, почему возникает

пузырек, почему он так мал – раздел 3. Проанализировано, как происходит дифракция падающей электромагнитной (ЭМ) волны гауссова пучка на микропузырьке – раздел 4. Промоделировано, каким образом яркое дифракционное кольцо отпечатывается на поверхности мишени – раздел 5.

2. Постановка и результаты эксперимента.

Источником излучения являлся волоконный иттербиевый лазер, генерирующий линейно поляризованные импульсы длительностью $\tau_L = 270$ фс на длине волны 1028 нм с частотой следования до 5 кГц. Распределение интенсивности излучения в поперечном сечении пучка соответствует гауссову. С помощью микрообъектива ($\times 20/0.5$) лазерный пучок фокусировался по нормали на поверхность образца в пятно диаметром 6 мкм по уровню $1/e$. В качестве мишени использовалась полированная пластина кремния n -типа с кристаллографической ориентацией [111], с шероховатостью $R_a = 0.1$ нм (среднее арифметическое отклонение профиля). Образец размещался в чашке Петри, заполненной глицерином. Толщина слоя глицерина, через которую проходит лазерное излучение, составляет 0.9 мм. Экспериментальная схема представлена в работе [14].

Поверхность кремния, погруженного в глицерин, облучалась двумя идентичными импульсами с задержкой между ними 200 мкс. Энергия в обоих импульсах изменялась с помощью полуволновой пластинки и поляризатора. Плотность энергии (флюенс F) на поверхности образца в гауссовом пятне варьировалась от $F_0 = 0.6$ до $1.7F_a$; здесь F_0 – падающая плотность энергии в центре пятна, F_a – порог абляции кремния для однократного воздействия в глицерине на длине волны $\lambda = 1028$ нм (это λ в вакууме), составивший 0.44 Дж/см². Порог абляции определен по методике [16].

Для исследования топографии модифицированной поверхности мы использовали атомно-силовой микроскоп (АСМ) в полуконтактном режиме с радиусом сканирующего зонда < 10 нм. Вертикальное разрешение составляет 0.05 нм. Пример применения АСМ показан на рис. 2В (синяя кривая). Для анализа приповерхностных слоев и подповерхностных структурных изменений применили просвечивающую электронную микроскопию (ПЭМ), см. рис. 2А. Для этого методом фокусированного ионного пучка (ФИП) вырезалась ламель толщиной около 100 нм.

На рисунке 2 представлена структура, полученная в результате воздействия двух ФЛИ с $F_0 = 1.02F_a$. После воздействия 1-го ФЛИ на поверхности формируется параболическая микроямка диаметром 4 мкм [15]. Глубина ямки (6 нм) и высота ва-

лика вокруг нее (7 нм) очень малы по сравнению с ее диаметром. Поэтому при электродинамическом расчете мы пренебрегали существованием этого слабого рельефа. Как говорилось выше, 1-й ФЛИ формирует пузырек. В результате воздействия в ту же область 2-го ФЛИ на поверхности за счет дифракции на пузырьке формируется гораздо более глубокая (по сравнению с рельефом после 1-го ФЛИ) циркулярная ямка, окруженная высокими валиками (рис. 2). Резкое углубление рельефа при относительно небольшом увеличении флюенса по сравнению с F_0 (в 1.6 раза, красная кривая на рис. 2В) вызвано в основном изменением геометрии и сокращением размера – вместо фокального пятна диаметром 6 мкм имеем дифракционное кольцо шириной 0.6 мкм (ширина пика красной кривой на полувысоте от максимума).

3. О размерах микропузырька.

При облучении 1-м ФЛИ пузырька нет, и задача о взаимодействии ФЛИ с веществом является стандартной. Глубина D поглощения излучения в кремнии при комнатной температуре велика (микроны). Темп ионизации валентных электронов через щель в зону проводимости и соответственно темп роста dn/dt концентрации n электрон-дырочной плазмы растет с увеличением интенсивности лазерного импульса. Глубина $D(t)$ с течением времени уменьшается. Показатель преломления меняется с изменением концентрации плазмы $n(z, t)$, которая зависит от времени и глубины z ; $z = 0$ на границе с глицерином. Максимум концентрации располагается на границе $z = 0$. Концентрация $n(z = 0, t)$ возрастает во время действия импульса.

При наших интенсивностях величина $n(z = 0, t)$ начинает превышать критическую плотность в момент t_h во время действия импульса: $t_h < \tau_L$. Критической является концентрация n_{cr} , при которой плазменная частота $\sqrt{4\pi n_{cr}(z = 0, t)e^2/m}$ начинает превосходить частоту лазерного излучения. При этом толщина D сокращается от значений в тысячи нм до значений в десятки нм, и ситуация становится аналогичной ситуации в металлах с поглощением излучения в скин-слое.

Нами выполнены серии гидродинамических (ГД) и молекулярно-динамических (МД) расчетов, в которых мы опустили стадию роста концентрации n до критического значения n_{cr} . Данная стадия несущественна для описания нагрева и последующего гидродинамического движения, поскольку разогрев тонкого (десятки нм) приповерхностного слоя происходит на временах $t > t_h$ во время действия ФЛИ. При этом гидродинамическое движение начинается значительно позже окончания ФЛИ: $t \sim t_s \gg \tau_L$,

$t_s \sim 10$ пс, $\tau_L = 0.27$ пс. Наши ГД и МД расчеты описывают ситуацию после металлизации приповерхностного слоя кремния: $t > t_h$, $n > n_{cr}$. Для моделирования использована изученная нами ранее для других приложений пара алюминий-вода, которая имеет примерно такое же отношение акустических импедансов $Z_{Al}/Z_{H_2O} = 9.5$, как кремний-глицерин $Z_{Si}/Z_{Gl} = 6.3$. Закономерности движения будут аналогичными для этих двух пар.

Основной вопрос, который мы задаем себе – как получить столь малый пузырек с радиусом от нескольких сот нм? Нетривиальный новый эффект, обнаруженный нами, заключается в том, что при поглощенных флюенсах F_{abs} ниже порога абляции $F_{abs} < F_a$ происходит механический отрыв жидкости от мишени. Это связано с тем, что за счет когезии в конденсированном веществе мишени при $F_{abs} < F_{nucl}$ (или за счет комбинированного действия когезии и поверхностного натяжения при $F_{nucl} < F_{abs} < F_a$) граница мишени останавливается и поворачивает назад, тогда как жидкость продолжает движение по инерции; F_{nucl} – порог нуклеации, выше которого в расплаве появляются жизнеспособные зародыши паровой фазы. Причем указанный разрыв контакта имеет место на временах порядка нескольких акустических масштабов времени в мишени $t_s = d_T/c_s$, здесь d_T – толщина прогретого слоя (20–40 нм), c_s – скорость звука в мишени. Величина $t_s \sim 10$ пс, т.е. отрыв (разрыв контакта жидкость–мишень) происходит на ранней стадии. В результате резко снижается тепловой поток, идущий от горячей мишени в жидкость. Соответственно уменьшается толщина прогретого слоя жидкости z_T . А значит, сокращается и радиус пузырька R , который позже формируется из вещества жидкости этого слоя.

Такого рода ухудшение теплопередачи невозможно при обычных условиях фемтосекундной абляции в жидкость [13], поскольку облучение идет существенно выше порога абляции F_a . При $F_{abs} > F_a$ потери теплового контакта нет, нагрев продолжается долго, поэтому значения радиуса пузырька R больше. При наносекундной абляции в жидкость давления всегда положительные (нет зон отрицательных или нулевых давлений, лагранжевы частицы в цепочке всегда прижаты друг к другу) и механических разрывов (откола) нет. Сказанное о сепарации H_2O от Al проиллюстрировано на рис. 3 и 4. Скорость Δu движения налево края воды равна 30 м/с. Грубая оценка времени формирования пузырька $R/\Delta u$ размером $R \sim 1$ мкм равна 30 нс.

Расчеты (рис. 3, 4) выполнены с помощью гидрокода, см. [13]. Детали выходят за рамки письма и тре-

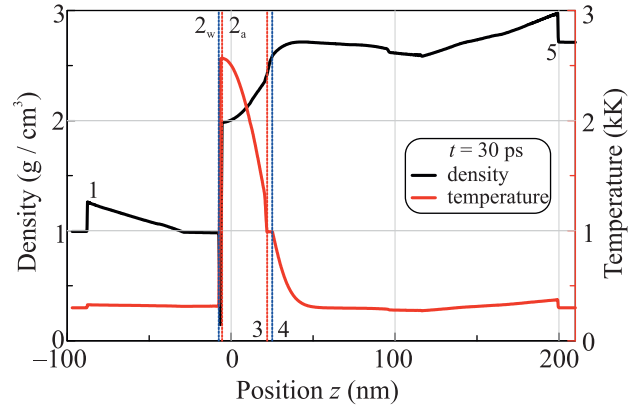


Рис. 3. (Цветной онлайн) Профили плотности (черная кривая) и температуры (красная кривая) после отделения жидкости от мишени, полученные в ГД расчете. Метки 1–5 суть: 1 – ударная волна (УВ) в воде; 2 – контакт H_2O – Al с начальным положением $z = 0$; 3–4 – зона плавления Al , слева жидкая фаза, справа – твердая; 5 – УВ в мишени. Контакт расщепился и образовались два берега – со стороны воды 2_w , со стороны алюминия 2_a . Появился слой однородного течения в воде, который прилегает к границе 2_w и расширяется вслед за УВ в воде со скоростью звука

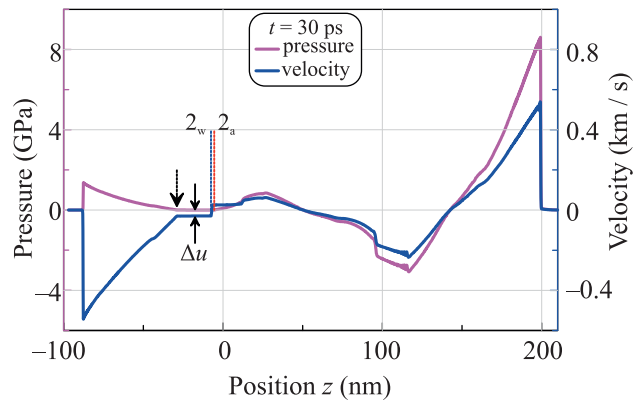


Рис. 4. (Цветной онлайн) Профили давления (красная кривая) и скорости (синяя кривая) после формирования зазора 2_w – 2_a между H_2O и Al в ГД расчете. Давление в пустом зазоре (испарение мало) и в прилегающих к зазору участках воды и алюминия равно нулю. Участок нулевого давления в воде находится между левой стрелкой и точкой 2_w . Двойной стрелкой показана скорость Δu смещения влево границы воды 2_w , см. текст

буют дополнительного изложения. Параметры задачи описаны в разделе 2. Представление алюминия основано на широкодиапазонном уравнении состояния [17–21]. Вода моделируется с помощью уравнения типа Ми–Грюнайзена, см. [22, 13]. Это уравнение хорошо аппроксимирует механические свойства воды.

В нашей постановке в гидрокде не учитывается теплопроводность воды (хотя температура поверхности мишени высокая, см. рис. 3). Поэтому нагрев воды обязан только диссипации в ударной волне (УВ). При нашей амплитуде УВ этот нагрев мал. Соответственно разрыв 2_w-2_a на рис. 3 и 4 не заполняется парами воды – давление в результате сепарации падает до нуля.

Другая серия расчетов выполнена с помощью МД кода, см. раздел 5. Здесь присутствует атомная теплопроводность жидкости. Отметим, что параметры воды и глицерина близки – скорость звука различается на треть, плотность отличается на четверть, поверхностное натяжение примерно одинаковое, критические параметры глицерин/вода: T_c 850/647 К, p_c 75/220 атм. Вязкость отличается сильно, но это становится существенным только после формирования пузырька. В МД применяется описание воды [23, 24], которое дает близкие к реальности значения механических характеристик (плотность, скорость звука), температура плавления и T_c немного ниже, чем в природной воде. Теплопроводность в широком диапазоне плотностей и температур по порядку величины такая же, как у воды.

Из-за конечной теплопроводности в МД имеется нагрев жидкости от горячей мишени. Типичная ситуация показана на рис. 5–7. Ультракраткий нагрев

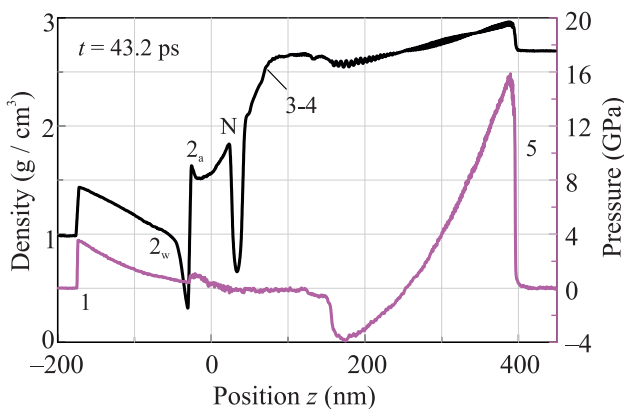


Рис. 5. (Цветной онлайн) Профили плотности и давления в МД моделировании. Смысл меток 1–5 такой же, как на рис. 3. N – зона нуклеации. 2_a-N – откольная пластина, которая оторвалась бы при $F_{abs} > F_a$. В этом расчете $F_{nucl} < F_{abs} < F_a$, т.е. нуклеация есть, но отрыва пластины не происходит

порождает две УВ (ср. с рис. 3, 4). Нас интересуют явления в приконтактной зоне 2. На момент, показанный на рис. 5–7, давление в ней 4 кбар – на порядок выше критического давления p_c . Малый подъем давления на левом краю пластины 2–N связан с бега-

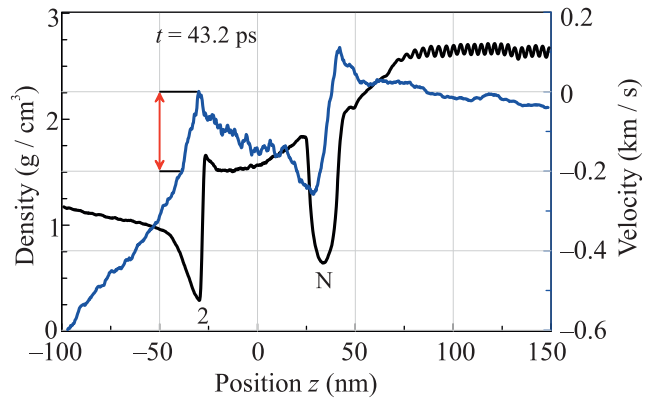


Рис. 6. (Цветной онлайн) Давление нагретой воды в зоне 2 способствует расширению этой зоны в МД расчете. Красная двойная стрелка дает скорость расширения 200 м/с

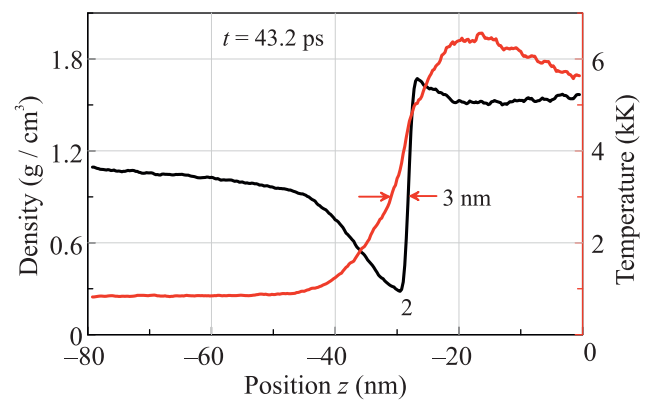


Рис. 7. (Цветной онлайн) МД распределение температуры в горячем приконтактном слое 2, также см. рис. 6. Ширина зоны разложения 3 нм указана для $T > 3$ кК

ющей внутри пластины акустической волной [25–28]. Пространственные биения профиля в кристаллической фазе (правее зоны плавления 3–4 на рис. 5, 6) возникают из-за малости сеточного шага, который соизмерим с периодом решетки кристалла.

Из-за нагрева воды теплопроводностью нет ситуации с разрывом контакта, как в гидрокде (ср. рис. 3, 4). Соответственно в зоне 2 нет снижения давления до нуля, но плотность в ней существенно уменьшается, см. рис. 5–7. Снижение плотности связано с двумя факторами. Во-первых, расширение зазора 2 из-за механического растяжения, обусловленного инерцией воды и торможением границы вещества мишени (как в гидрокде). Во-вторых, под действием собственного давления горячей воды в зоне 2. Причем, видимо, 1-й фактор важнее, поскольку градиент давления на рис. 5 направлен в сторону, обратную расширению.

Из баланса масс можно составить оценку размера микропузырька (основная цель данного раздела). Запишем $\rho_{hw}\pi R_L^2 z_T = \rho_g (4/3)\pi R^3$. Слева стоит масса диска с радиусом $R_L = 3$ мкм (радиус гауссова пучка) и толщиной z_T . Эта толщина выделена на рис. 7 красными стрелками на уровне температуры 4 кК. Диск наполнен горячей водой с плотностью $\rho_{hw} \approx 0.3$ г/см³, см. рис. 7. Справа в балансе масса пузырька: ρ_g – плотность газа, R – радиус пузырька. Отсюда

$$R/R_L = 0.9(A/\Gamma)^{1/3}, \quad A = \rho_{hw}/\rho_g, \quad \Gamma = R_L/z_T.$$

Видим, что отношение радиусов R/R_L определяется делением двух больших чисел (оба порядка 10^3): отношением плотностей A (плотность порядка плотности конденсированной фазы отнесена к плотности газа при давлении порядка 1 атм) и геометрическим фактором Γ . Давление в пузырьке радиусом 500 нм в глицерине равно 3.4 атм (1 атм – внешнее давление, 2.4 атм – это $2\sigma/R$).

В пузырьках миллиметровых размеров, при их 1-й осциляции [29, 30], содержится в основном испаренная жидкость. Объем вычисляется с помощью адиабат жидкости, продолженных до давления в 1 атм, см. рис. 11 в [13]. В нашей ситуации с микропузырьками $R \sim 1$ мкм длина свободного пробега молекулы пара порядка R – кнудсеновский режим: время пролета пузырька молекулой ~ 10 нс. Понятно, что паровой пузырек не может существовать 200 мкс, поскольку за это время и жидкость, и мишень остынут до комнатной температуры и пар сконденсируется. Таким образом, наш пузырек должен быть наполнен газообразными продуктами разложения глицерина.

Видимо, в нанометровом слое у горячей стенки (см. красные стрелки на рис. 7) происходит разложение глицерина. Об образовании газовых (не паровых) пузырьков при абляции в жидкость см. статью [31]. На сегодня неясно, какая массовая доля этого горячего слоя останется в газовом состоянии на временах в сотни микросекунд в наших опытах. Понятно, что падение этой доли меньше единицы в приведенном выше балансе масс (левая сторона уравнения) уменьшает радиус пузырька R .

4. Электродинамическое моделирование. Моделирование производилось методом конечных элементов с помощью Comsol Multiphysics. Задача о падении гауссова пучка с радиусом пучка $R_L = 3$ мкм на кремний решалась в осесимметричной постановке, для циркулярно поляризованного по часовой стрелке и циркулярно поляризованного против часовой стрелки гауссова пучка. Затем на основе двух решений для циркулярно поляризованных

гауссовых пучков строилось решение для линейно-поляризованного гауссова пучка (реализованного в эксперименте).

Численное моделирование производилось для двух случаев. Первый случай соответствовал облучению поверхности кремния 1-м ФЛИ. При этом над поверхностью кремния со стороны падающего светового импульса располагался однородный глицерин. Второй случай соответствовал облучению поверхности кремния 2-м ФЛИ. При этом над поверхностью кремния располагался газовый пузырек (с центром на оси падения импульса) в виде сферы или усеченной сферы с радиусом R и с расстоянием d от поверхности кремния до центра сферы, см. пример на рис. 1. Коэффициенты преломления кремния, глицерина и газа равны $3.566 + 2.6 \cdot 10^{-4} i$, 1.46 и 1 при $\lambda = 1028$ нм.

В задаче о 1-м ФЛИ было рассчитано пространственное распределение поглощаемой в кремнии мощности. Была найдена максимальная (на оси пучка) интенсивность I_G электрического поля в кремнии на глубине 20 нм при заданной энергии импульса. В дальнейшем эта величина использовалась для нормировки пространственного перераспределения интенсивности 2-го импульса в кремнии.

В результате моделирования падения второго импульса на поверхность кремния при наличии в глицерине газового пузырька было найдено трехмерное распределение интенсивности $I(r, z)$ электрического поля 2-го импульса в кремнии, где r – цилиндрический радиус, отсчитанный от оси, z – расстояние до поверхности кремния по нормали к ней. Таким образом, в пренебрежении нелинейными оптическими эффектами нормированное распределение $I(r, z)/I_G$ оказывается не зависящим от энергии импульса (энергии 1-го и 2-го импульса равны). Пример расчета показан на рис. 1 и 2 (красная кривая).

5. Молекулярная динамика. Прямое атомистическое моделирование глицерина и кремния сильно затруднено сложностью межатомного взаимодействия в этих веществах, а также между атомом Si и молекулой глицерина. Поэтому МД моделирование было проведено для пары веществ с близкими механическими параметрами, а именно, плотностью и скоростью звука. Глицерин представляла атомарная модель воды (молекула как точечная частица) с потенциалом [24], а кремний – модель алюминия с ЕАМ потенциалом [32]. Межатомное взаимодействие “атома” воды и кремния описывалось Леннард-Джонсовским потенциалом с положением минимума, равном сумме ван-дер-Ваальсовых радиусов атомов кремния (0.21 нм) и кислорода (0.152 нм), и ма-

лой глубиной потенциальной ямы $\varepsilon/k_B = 113$ К, как между молекулами кислорода.

По вертикали (ось z) слой воды толщиной 200 нм покрывал слой алюминия в 200 нм. Вертикальный размер расчетной области $L_z = 500$ нм, причем верхняя граница воды и нижняя граница кремния были свободными, при незначительной плотности паров воды над ними. По горизонтальной оси расчетная область была $L_x = 400$ нм, и вещества полностью заполняли ее. Так как рассматривалась плоская задача, то размер области по оси y был небольшой, $L_y = 10$ нм. По всем трем осям накладывались периодические граничные условия. Всего в системе было примерно 48×10^6 атомов алюминия и 26×10^6 “атомов” воды.

Перед тем как произвести лазерный нагрев алюминия, система приводилась в механическое и термодинамическое равновесие при $p \approx 0$ и $T = 300$ К при помощи термостата Ланжевена. Затем с помощью этого термостата производился быстрый нагрев центрального пятна на поверхности алюминия с шириной полосы в $l_x = 160$ нм, что примерно в $M = 6.4$ раза меньше, чем в экспериментальном случае, показанном на рис. 2. Для установления подобия между моделированием и экспериментом масштабный фактор M используется для определения глубины прогрева в МД расчете, а также для сравнения расчетных и экспериментальных профилей поверхности алюминия/кремния, см. рис. 2.

Распределение целевой температуры по глубине было выбрано гауссовым, а по ширине – приближенным по форме к гауссову распределению $T(x) = T_0 \cos^2(\pi x/l_x) + 300$ К, что дает температурное поле $T(x, z) = T_0 \cos^2(\pi x/l_x) \exp[-(z/h)^2] + 300$ К, где глубина прогрева $h = 20$ нм, $|x| < l_x/2$. Нагрев атомов алюминия велся в течение 1 пс, что типично для времени передачи энергии от электронной к ионной подсистеме в алюминии. Для исключения торможения термостатом разгона вещества в плоскости xz , нагрев велся только по y -компоненте скорости. Передача тепловой энергии в другие поступательные степени свободы происходила в результате межатомных столкновений.

Заключение. В работе экспериментально и теоретически исследованы особенности воздействия на поверхность кремния, погруженного в жидкость, двух фемтосекундных лазерных импульсов, следующих с субмиллисекундной временной задержкой. Специфика такого воздействия заключается в образовании микронного газового пузырька после воздействия 1-го импульса и рассеяния на нем 2-го импульса с образованием кольцевой дифракционной карти-

ны, приводящей к необычно глубокой модуляции поверхностного рельефа.

Высота структур на кремнии, формируемых по данной методике, составляет сотни нанометров. И это при низкой и умеренной энергетике воздействия, которая не сопровождается существенной потерей массы мишени. Без пузырька рельефы гораздо менее выражены, их высота на 1–2 порядка ниже. Имея в виду приложения, отметим, что технически более сложной альтернативой для создания субмикронных структур является применение УФ излучения на дифракционном пределе.

С помощью развитой теоретико-численной модели объяснены и получены количественные данные об особенностях образования и размерах газового пузырька, механизме “слабой теплопроводности”, дифракции излучения, формировании нанорельефа. Для решения проблемы разработан гибридный вычислительный подход, опирающийся на физическую специфику проблемы лазерного воздействия в жидкости. Подход состоит в применении дополняющих друг друга численных кодов: гидродинамика с реальными уравнениями состояния и учетом фазовых переходов, электродинамика, и молекулярная динамика модельной системы.

Авторы (В. В. Жаховский, С. А. Ромашевский, С. И. Ашитков, Н. А. Иногамов) – выполнившие эксперимент, МД моделирование и разработку физической модели – благодарят Российский научный фонд (грант #19-19-00697) за поддержку. В. А. Хохлов, выполнивший ГД расчет, благодарит Министерство науки и высшего образования РФ за финансовую поддержку (соглашение с ОИВТ РАН # 075-15-2020-785).

1. E. Stratakis, M. Barberoglou, C. Fotakis, G. Viau, C. Garcia, and G. A. Shafeev, *Optics Express* **17**(15), 12650 (2009).
2. D. Zhang, B. Gokce, and S. Barcikowski, *Chem. Rev.* **117**(5), 3990 (2017).
3. A. V. Kabashin, A. Singh, M. T. Swihart, I. N. Zavestovskaya, and P. N. Prasad, *ACS Nano* **13**(9), 9841 (2019).
4. S. I. Kudryashov, A. A. Samokhvalov, A. A. Nastulyavichus, I. N. Saraeva, V. Y. Mikhailovskii, A. A. Ionin, and V. P. Veiko, *Materials* **12**(4), 562 (2019).
5. C. Unger, J. Koch, L. Overmeyer, and B. N. Chichkov, *Opt. Express* **20**(22), 24864 (2012).
6. Y. Nakata, N. Miyanaga, K. Momoo, and T. Hiromoto, *Appl. Surf. Sci.* **274**, 27 (2013).
7. D. S. Ivanov, A. I. Kuznetsov, V. P. Lipp, B. Rethfeld, B. N. Chichkov, M. E. Garcia, and W. Schulz, *Appl. Phys. A* **111**, 675 (2013).

8. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, and V. A. Khokhlov, *JETP* **120**(1), 15 (2015).
9. S. V. Starikov and V. V. Pisarev, *J. Appl. Phys.* **117**, 135901 (2015).
10. A. A. Kuchmizhak, A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, A. A. Rudenko, Yu. N. Kulchin, O. B. Vitrik, and T. V. Efimov, *Opt. Lett.* **40**(8), 1687 (2015).
11. A. Kuchmizhak, O. Vitrik, Yu. Kulchin, D. Storozhenko, A. Mayor, A. Mirochnik, S. Makarov, V. Milichko, S. Kudryashov, V. Zhakhovsky, and N. Inogamov, *Nanoscale* **8**, 12352 (2016).
12. Yu. V. Petrov, V. A. Khokhlov, V. V. Zhakhovsky, and N. A. Inogamov, *Appl. Surf. Sci.* **492**, 285 (2019).
13. N. A. Inogamov, V. A. Khokhlov, Yu. V. Petrov, and V. V. Zhakhovsky, *Optical and Quantum Electronics* **52**, 63 (2020).
14. S. A. Romashevskiy, S. I. Ashitkov, and M. B. Agranat, *Opt. Lett.* **45**(4), 1005 (2020).
15. S. A. Romashevskiy, S. I. Ashitkov, and M. B. Agranat, *Appl. Phys. Lett.* **109**(26), 261601 (2016).
16. J. M. Liu. *Opt. Lett.* **7**(5), 196 (1982).
17. A. V. Bushman, G. I. Kanel', A. L. Ni, and V. E. Fortov, *Intense dynamic loading of condensed matter*, Taylor & Francis, Washington, DC (1993).
18. K. V. Khishchenko, *High Temp.* **35**(6), 991 (1997).
19. I. V. Lomonosov, *Laser and Particle Beams* **25**, 567 (2007).
20. И. В. Ломоносов, В. Е. Фортов, Я. Б. Зельдович, *УФН* **184**, 231 (2014) [*Phys. Usp.* **57**, 219 (2014)].
21. K. V. Khichshenko, *Math. Montis.* **40**, 140 (2017).
22. R. I. Nigmatulin and R. Kh. Bolotnova, *High Temp.* **49**(2), 303 (2011).
23. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, and V. A. Khokhlov, *JETP* **127**(1), 79 (2018).
24. V. V. Zhakhovsky, Tabulated EAM potential for water can be downloaded from www.researchgate.net/project/Development-of-interatomic-EAM-potentials.
25. T. Antoun, L. Seaman, D. R. Curran, G. I. Kanel, S. V. Razorenov, and A. V. Utkin, *Spall Fracture (Shock Wave and High Pressure Phenomena)*, Springer, N.Y., Berlin, Heidelberg (2003).
26. G. I. Kanel, S. V. Razorenov, and V. E. Fortov, *Shock-Wave Phenomena and the Properties of Condensed Matter*, Springer, N.Y., Berlin, Heidelberg (2004).
27. G. I. Kanel', V. E. Fortov, and S. V. Razorenov, *Phys. Usp.* **50**, 771 (2007).
28. B. J. Demaske, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, and I. I. Oleynik, *Phys. Rev. B* **82**, 064113 (2010).
29. J. Lam, J. Lombard, Ch. Dujardin, G. Ledoux, S. Merabia, and D. Amans, *Appl. Phys. Lett.* **108**(7), 074104 (2016).
30. K. Sasaki and N. Takada, *Pure Appl. Chem.* **82**(6), 1317 (2010).
31. M.-R. Kalus, N. Bäsch, R. Streubel, E. Gökce, S. Barcikowski, and B. Gökce, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **19**, 7112 (2017).
32. V. V. Zhakhovskii, N. A. Inogamov, Yu. V. Petrov, S. I. Ashitkov, and K. Nishihara, *Appl. Surf. Sci.* **255**(24), 9592 (2009).