

Разрушение твердой пленки в результате действия ультракороткого лазерного импульса

С. И. Анисимов, В. В. Жаховский^{+*}, Н. А. Иногамов, К. Нишихара*, А. М. Опарин[□], Ю. В. Петров

Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

⁺Объединенный институт высоких температур РАН, 127412 Москва, Россия

*Institute of Laser Engineering, Osaka University, Suita, Osaka 565-0871, Japan

[□]Институт автоматизации проектирования РАН, 123056 Москва, Россия

Поступила в редакцию 15 апреля 2003 г.

В работе представлены результаты молекулярно-динамического (МД) моделирования разрушения кристаллической пленки, нагретой фемтосекундным лазерным импульсом. Нагрев считается мгновенным, поскольку за время импульса не успевает произойти сколько-нибудь заметного смещения вещества. Разрушение пленки происходит из-за взаимодействия волн разгрузки и может рассматриваться как модель более сложного процесса откола тонкого поверхностного слоя массивной мишени в случае, когда после прогрева слой остается твердым. Обнаружено, что разрушение кристаллического порядка, вызванное деформацией растяжения и сильной анизотропией остаточных напряжений, приводит к разделению отрывающегося от мишени слоя на две части. Растяжение решетки и формирование анизотропных напряжений происходит вследствие расширения нагретого кристалла.

PACS: 47.40.–x, 62.50.+p, 64.70.Fx, 65.70.+y, 83.50.–v

Применение ультракоротких лазерных импульсов открывает интересные перспективы значительного повышения пространственного разрешения при обработке поверхностей (например, при удалении сверхтонких слоев или создании микрорельефов на облучаемой поверхности) [1–7]. Другое важное применение ультракоротких импульсов связано с тем, что, как будет показано в статье, лазерное воздействие приводит к отрыву сверхтонких слоев твердого вещества. После отрыва они пролетают сотни своих толщин (несколько микрон). В дальнейшем такие откольные слои должны распадаться на ультрадисперсные твердые частицы. Эти частицы могут найти разнообразные технологические применения для напыления [8], бомбардировки [9, 10] или анализа путем их последующего электростатического ускорения [11, 12]. Помимо прикладных аспектов, рассматриваемая задача о разрушении нагретых лазерным излучением поверхностных слоев представляет общезначимый интерес.

Физика воздействия ультракоротких импульсов на материалы подробно исследовалась экспериментально и теоретически. В частности, оптическими методами был изучен широкий класс материалов (металлы, полупроводники, диэлектрики), поглощающих лазерные импульсы длительностью порядка 100 фс [3, 4]. Исследовано интересное явление сверх-

быстрого плавления (за времена, сравнимые с обратной частотой Дебая) [13, 14]. Открыто общее для всех изучавшихся металлов и полупроводников явление формирования интерференционной картины (колец Ньютона) в определенном диапазоне плотностей поглощенной мишенью световой энергии Q (порядка 0.1 Дж/см^2) [3, 4]. В случае наносекундных и более длинных лазерных импульсов такой картины не наблюдается, поскольку из-за звуковой релаксации амплитуды напряжений малы (соответствующие давления порядка давления насыщенных паров) и абляционный унос вещества носит в основном испарительный характер [1, 2, 8, 15, 16].

Как было выяснено в работах [17–19], формирование интерференционных колец обусловлено отрывом слоя конденсированного вещества от мишени. Энергия ультракороткого импульса поглощается электронной подсистемой и посредством электрон-фононной релаксации за времена порядка 10–100 пс передается кристаллической решетке [20–23]. Толщина δ нагретого слоя вещества вблизи границы кристалла с вакуумом равна либо глубине проникновения электронной тепловой волны за время электрон-фононной релаксации, либо толщине скин-слоя – в зависимости от того, какая из указанных величин больше [18, 19, 22]. На гидродинамическом этапе происходит отрыв слоя толщиной порядка δ .

Расчеты [18, 19, 22] и эксперименты по измерению глубины кратера [3, 4] показывают, что δ по порядку величины составляет 100 межатомных расстояний. Адекватным инструментом в такой мезоскопической ситуации является молекулярно-динамическое моделирование [19, 24, 25].

Перейдем к описанию постановки задачи и результатов ее решения. Методом молекулярной динамики моделируется разлет вдоль оси x нагретого слоя с периодическими граничными условиями по поперечным к направлению расширения y - и z -координатам. В начальный момент $t = 0$ нагретая пленка занимает область $-\delta < x < \delta$, на границах которой она граничит с вакуумом. Молекулярно-динамические (МД) расчеты выполнены для леннард-джонсовского потенциала межатомного взаимодействия. В момент $t = 0$ атомы упакованы со средней плотностью n_0 в гранецентрированную кубическую (ГЦК) решетку, соответствующую состоянию равновесия ($p = 0$) при $T = 0$. Моделирование сводится к решению уравнений движения атомов и расчету макроскопических характеристик системы. Методика моделирования описана в работах [19, 24, 25].

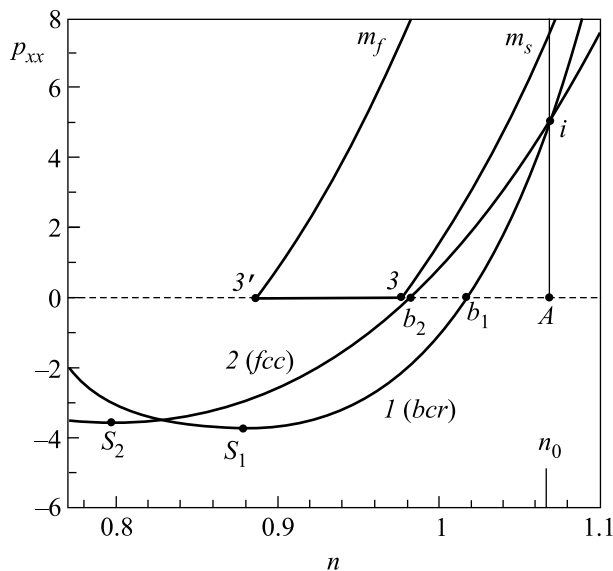


Рис.1. Область плавления $m_s - m_f$, отрезок 3-3', представляющий тройную точку, изохора начальных состояний $A \rightarrow i$ и запороговые изэнтропы 1 (bcc) и 2 (fcc) решеток РОЦ и ГЦК ($T_0 = 0.8$). Точки b_j, S_j ($j = 1, 2$) соответствуют пересечениям изэнтроп с бинадалью и спинодалью. Цифровые значения в единицах леннард-джонсовского потенциала

На рис.1 представлена фазовая диаграмма в переменных n, p_{xx} , где p_{xx} – продольное напряжение. При рассматриваемых температурах $T < T_3$ (T_3 –

температура в тройной точке) давление пара экспоненциально мало. Поэтому в линейном по давлению масштабе бинадаль b (кривая равновесия конденсированная фаза–пар) практически совпадает с прямой $p_{xx} = 0$. Кривые m_s, m_f (рис.1) являются границами двухфазной (жидкость–твердое тело) области плавления со стороны твердой и жидкой фаз, соответственно. Отрезок 3-3' соответствует тройной точке. В результате поглощения лазерной энергии вещество переходит из исходного состояния ($n_0, T = 0, p = 0$, ГЦК решетка, точка A на рис.1) в состояние (n_0, T_0, p_i , точка i), которое является начальным для последующего гидродинамического движения. Точки, соответствующие этим начальным состояниям, заполняют изохору $n \equiv n_0$ ($p_{xx} \geq 0$). Они параметризуются начальной температурой T_0 , которая, в свою очередь, определяется поглощенной энергией Q . В точке i давление изотропно: $p_{xx} = p_{yy} = p_{zz} = p_i$. Нас интересует движение кристалла. Твердой фазе соответствует отрезок изохоры n_0 , лежащий под кривой плавления m_s . На этом отрезке симметрия (ГЦК) и постоянная решетки $(4/n_0)^{1/3}$ остаются такими же, как в холодном кристалле ($n_0, T = 0$).

Таким образом, мгновенному нагреву вещества на фазовой диаграмме соответствует переход $A \rightarrow i$ (рис. 1). Начинаясь после этого движение является изэнтропическим. Расширение вещества происходит вдоль нижней части изэнтропы 1 (bcc), выходящей из точки i в сторону уменьшения плотности. В одномерном приближении расширяющийся слой остается плоским. Такое движение деформирует кристалл только вдоль продольной оси x , оставляя неизменными положения атомов в поперечных направлениях y и z . Характер движения зависит от ориентации решетки по отношению к оси x , вдоль которой происходит расширение. Ниже рассмотрен пример с (110) ориентацией. В этом случае ГЦК кристалл (точка $i, n = n_0$) деформируется в ромбический объемноцентрированный (РОЦ) кристалл (кривая 1, $n < n_0$). Изэнтропе ГЦК кристалла с постоянной решетки $(4/n)^{1/3}$ (где n – текущая плотность) соответствует кривая 2 (fcc). Из сравнения кривых 1 и 2 на рис.1 видно, что при одноосном расширении давление падает быстрее, чем при изотропном. В точках S (пересечение изэнтропы со спинодалью) абсолютная величина напряжения p_{xx} достигает максимума. Кривые, приведенные на рис.1, получены из расчета по дебаевской модели. Они хорошо согласуются с вычислениями других авторов [26–28], со справочными данными по инертным газам [29], а также с приведенными ниже результатами МД расчета.

Выше было отмечено, что кольца Ньютона наблюдаются только в определенном интервале плотностей энергии поглощенного лазерного излучения $Q_d < Q < Q_u$. Чтобы объяснить это наблюдение, заметим, что повреждение мишени носит пороговый характер. При плотностях энергии, не превышающих определенного порога, отрыва поверхностного слоя не происходит, и кольца Ньютона не наблюдаются. При превышении порога происходит отрыв слоя толщиной $\sim \delta$ и появляются кольца. Таким образом, нижняя граница Q_d интервала плотностей энергии, в котором наблюдаются кольца, соответствует порогу возникновения откольного разрушения. Исчезновение колец на верхней границе Q_u объясняется тем, что с повышением Q монотонно уменьшается толщина отрывающегося конденсированного слоя (см. [17–19]).

Исследование откольного разрушения осуществляется путем экспериментов и полуэмпирического анализа [30–35]. Обычно рассматривается откол при нагружении ударной волной. Этот случай значительно отличается от рассматриваемого здесь быстрого (сверхзвукового) теплового нагружения, поскольку ударная волна больше сжимает и меньше нагревает. Соответственно, пороговая изэнтропа, начинающаяся с адиабаты Гюгонио, находится на фазовой диаграмме дальше от области плавления, чем изэнтропа, начинающаяся на изохоре n_0 . Если при исследовании околопорогового ударноволнового разрушения в акустическом приближении можно ограничиться законом Гука с участком пластичности (температуры малы) [32–34], то при тепловом нагружении требуется анализ на фазовой плоскости. В настоящей работе выполнено численное МД моделирование теплового разрушения при мгновенном нагреве. Отметим, что проведенное моделирование свободно от полуэмпирических допущений о кинетике разрушения, и число атомов в расчете равно по порядку величины числу атомов в эксперименте.

Приведем основные результаты МД моделирования. Для определения пороговой начальной температуры была выполнена серия расчетов с различными значениями T_0 . Было показано, что порогу разрушения пленки соответствует температура $T_0 = 0.75$. Здесь и далее все величины указаны в МД единицах [19, 24, 25]. Приведенные на рис.1 изэнтропы 1 и 2 соответствуют значению $T_0 = 0.8$, несколько превышающему порог разрушения. Рассмотрим этот случай более подробно. На начальной стадии движения от границы с вакуумом распространяется автомодельная волна разрежения, в которой профили зависят от переменной $\xi = (x - \delta)/t$. Волна состоит из участка $i - b_1$ (рис.1 и 2), на котором давление p_{xx} падает от

своего начального значения до нуля, и плато $b_1 - v$, на котором течение постоянно и $p_{xx} = 0$ (штриховая прямая на рис.2). Точки i и b_1 волны соответствуют

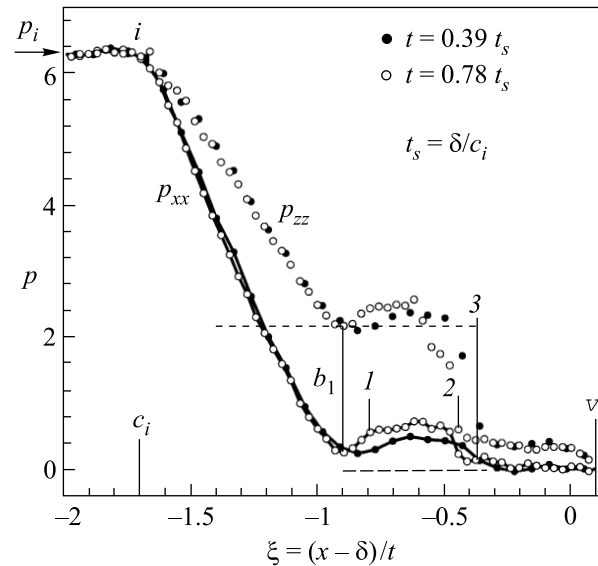


Рис.2. Автомодельная структура движения: волна разрежения $i - b_1$; зона сжатия 1–2; пластическая волна разрежения 2–3; разрушающая кристаллический порядок, область примерно однородного течения 3– v

на фазовой диаграмме (рис.1) состояниям i и b_1 изэнтропы 1. Важной дополнительной особенностью течения является пластическая волна разрежения 2–3 (рис.2), в которой происходит разрушение РОЦ решетки. Без этой особенности плато соответствовало бы тривиальному течению, в котором плотность n , давление p и скорость U постоянны.

Обсудим структуру течения и причины возникновения пластической волны разрежения. В жидкости напряжения p_{jj} ($j = x, y, z$) изотропны, поэтому и продольное, и поперечные напряжения разгружаются до нуля в волне $i - b_1$ и остаются полностью разгруженными на плато $b_1 - v$. Иная ситуация в твердом веществе. В начальном состоянии i напряжения p_{jj} изотропны. По мере растяжения кристалла в волне $i - b_1$ растет анизотропия напряжений. Для примера на рис. 2 показаны зависимости p_{xx} и p_{zz} от ξ . Уменьшение напряжений p_{jj} в волне $i - b_1$ обусловлено деформацией элементарной ячейки. Об этом свидетельствуют и расчет по дебаевской модели, и МД расчет.

Ускорение вещества вызвано только продольной составляющей напряжения. В волне $i - b_1$ она “разгружается” до нуля (нижний горизонтальный штриховой участок на кривой $p_{xx}(\xi)$, рис.2). При этом кристалл РОЦ переходит в состояние b_1 (рис.1). В

нем по поперечным направлениям решетка остается нагруженной в области плато (остаточные поперечные напряжения представлены верхней пунктирной линией на рис.2). Причем остаточные напряжения сравнимы с начальным давлением p_i и составляют 60% от p_i по направлению (-110) y и 35% по направлению (001) z . Отличие в напряжениях связано с неэквивалентностью направлений (-110) и (001) . В результате на плато формируется сильно анизотропное состояние, в котором отношение поперечного напряжения к продольному формально стремится к бесконечности. Именно в поперечных напряжениях запасена та часть начальной энергии сжатия решетки, частичное выделение которой в процессе разрушения РОЦ решетки приводит к образованию пластической волны 2–3.

Проанализируем вопрос о динамических эффектах, вызванных пластической волной 2–3. В процессе расширения вещество теплоизолировано, поэтому изменение внутренней энергии E обусловлено работой $\int pdV$. При одноосном растяжении давление p_{xx} падает быстро (ср. кривые 1 и 2 на рис.1). Следовательно, при равной плотности n энергия $E_{fcc}(n)$ ГЦК решетки меньше (на изэнтропе 2), чем энергия $E_{bcc}(n)$ РОЦ решетки (на изэнтропе 1). При плотности n_{b1} , соответствующей пересечению изэнтропы 1 с бинодалью, расчет по модели Дебая дает для разности энергий решеток значение $\Delta E_{\max}(n_{b1}) = 0.071$. Поскольку энергия E_{fcc} относится к равновесной решетке (состоянию с наименьшей энергией), то это значение является максимально возможным.

Разрушение РОЦ кристалла сопровождается выделением энергии. При этом остаточное поперечное напряжение снижается (рис.2), а продольное напряжение несколько возрастает. С этим повышением напряжения p_{xx} связано существенное дополнительное растяжение вещества. Рассмотрим влияние этого эффекта на характер течения. Энерговыведение ΔE увеличивает скорость расширения U_{3v} в зоне 3– v за пластической волной 2–3 ($U_{3v} > U_{12}$, рис.2) и повышает продольное давление ($p_{12} > p_{3v} = 0$) в области 1–2 перед волной 2–3. Область 3– v заканчивается границей с вакуумом, поэтому в ней давление p_{xx} равно нулю ($p_{3v} = 0$). Возникает двухволновая структура (волна сжатия и волна разрежения), поскольку область повышенного давления 1–2 распространяется по плато со скоростью продольного звука, большей скорости пластической волны.

Рассчитаем эту структуру, пренебрегая шириной переходной зоны 2–3 (считаем, что понижение плотности происходит скачком). Запишем законы сохранения массы, импульса и энергии на связанных скач-

ках 1 и 2–3. Перед скачком 1 (слабая ударная волна) РОЦ решетка находится в состоянии b_1 (плотность n_{b1} , продольное давление $p_{xx} = 0$). Рассмотрим задачу в системе координат, связанной с веществом в состоянии b_1 . По давлению p_{12} определяются параметры однородного течения в области 1–2: скорость $u_{12} = -p_{12}/\rho_{b1}c_{b1}$, превышение плотности (над значением n_{b1}) $\delta n_{12} = p_{12}/mc_{b1}^2$ и скорость скачка 1, равная $c_{b1} + p_{12}/\rho_{b1}c_{b1}$, где $\rho_{b1} = n_{b1}m$, m – масса атома, c_{b1} – скорость продольного звука в точке b_1 . Пусть D – скорость волны 2–3 (как принято, относительно вещества перед скачком 1). Из уравнений баланса массы и импульса на скачке 2–3 находим скорость однородного течения в области 3– v , равную $u_{3v} = (c_{b1} - D)p_{12}/\rho_{b1}c_{b1}D$, и понижение плотности $\delta n_{3v} = -(c_{b1} - D)^2 p_{12}/mc_{b1}^2 D^2$. Баланс энергии дает: $p_{12}^2/\rho_{b1}^2 D^2 = 2\Delta E/m$.

Приведенные соотношения хорошо согласуются с МД расчетом. Из МД данных по p_{12} и D и полученной формулы вычисляется энерговыведение ΔE в пластической волне. Оказывается, оно составляет 15% от максимально возможного $\Delta E_{\max}(n_{b1})$.

Образование двухволновой структуры имеет важные последствия. В частности, оно приводит к возникновению двух дополнительных (кроме центрального при $x = 0$) разрывов, лежащих симметрично относительно центра на значительном расстоянии от него. Поясним, как это происходит. Из-за повышения давления в зоне 1–2 формируется вторая ступень “разгрузки”. На первой ступени давление p_{xx} падает от p_i до p_{12} , а на второй – от p_{12} до нуля. Второй ступени соответствует значительное растяжение вещества. Падение плотности в волне 2–3 (рис.2) составляет 40% от падения плотности в первичной волне $i \rightarrow b_1$. Уже падения давления на первой ступени $p_i \rightarrow p_{12}$ достаточно для разрыва кристалла в центре, при $x = 0$. Превышение начальной температуры T_0 над порогом $(T_0)_{thr}$ невелико, поэтому центральное разрушение зарождается в момент $t_{fr} \approx 1.8\delta/c_i$, когда в центр приходит характеристика b_1 . Вдоль отраженной от центра характеристики b_1 напряжение p_{xx} примерно постоянно. Оно порядка предельного напряжения, при котором происходит разрыв. Поэтому, когда отраженная от центра характеристика b_1 встречается с пластической волной 2–3, которая дополнительно существенно растягивает вещество, происходит новый разрыв (рис.3). Оценка положения x_{add} этого разрыва дает: $x_{add} \approx 0.3\delta$. Координаты центрального и дополнительного разрывов соответствуют выраженным минимумам на профиле плотности (рис.4). Этот профиль получен усреднением по координатам y и z .

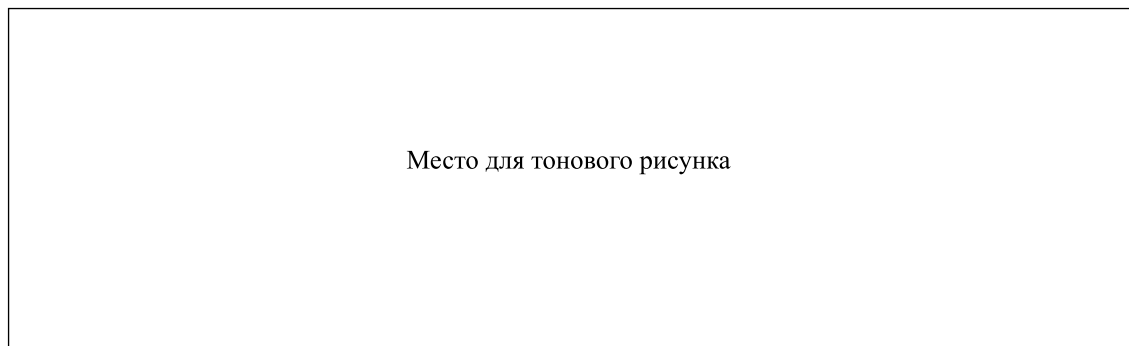


Рис.3. Начало формирования центральной $x = 0$ и периферийной $x = x_{add}$ зон разрыва, $t = 2.32t_s$. Для укрупнения рисунка показана правая половина ($x > 0$) слоя. Меткой δ отмечено начальное положение границы с вакуумом

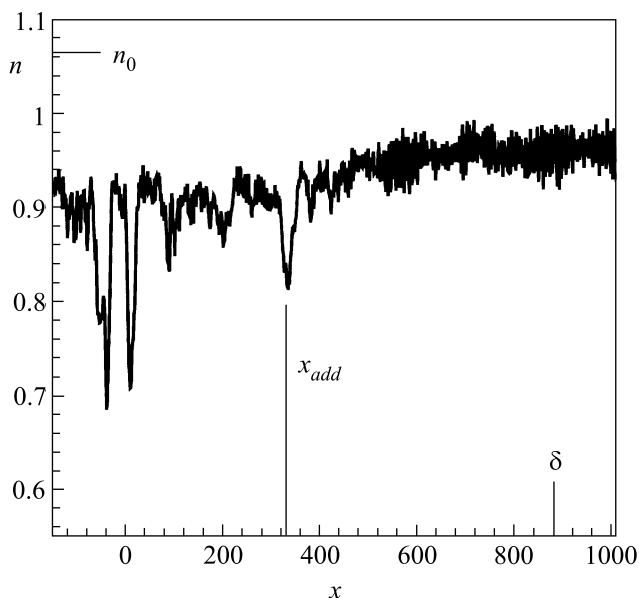


Рис.4. Профиль плотности после усреднения по поперечным координатам при $t = 2.32t_s$. Центральный разрыв образуется при $x \approx 0$. Отмечены положение дополнительного разрыва x_{add} и начальное положение границы слоя с вакуумом δ

Авторы с благодарностью отмечают поддержку Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 01-02-16136 и # 02-02-17499) и высказывают благодарность вычислительному центру университета Осаки и лично проф. С. Симоджио (Prof. S. Shimojo, Cybermedia Center, Osaka University) за организацию крупномасштабных вычислительных экспериментов.

1. С. И. Анисимов, Я. А. Имас, Г. С. Романов, Ю. В. Ходыко, *Действие излучения большой мощности на металлы*, М.: Наука, 1970.

2. С. И. Анисимов, Б. С. Лукьянчук, *УФН* **172**(3), 301 (2002).

3. K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri et al., *Phys. Rev. Lett.* **81**(1), 224 (1998).

4. D. von der Linde and K. Sokolowski-Tinten, *Appl. Surf. Science*, **154-155**, 1 (2000).

5. L. V. Zhigilei and B. J. Garrison, *J. Appl. Phys.*, **88**(3), 1281 (2000).

6. F. Vidal, T. W. Johnston, S. Laville et al., *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2573 (2001).

7. D. Perez and L. J. Lewis, *Phys. Rev. Lett.* **89**(25), 255504 (2002).

8. *Laser ablation in materials processing: fundamentals and applications*, Eds. B. Braren, J. J. Dubowski, and D. P. Norton, *Material Research Society Symp. Proc.* **285** (1993).

9. R. J. Beuhler, *J. Appl. Phys.* **54**(7), 4118 (1983).

10. Sh. Akhunov, S. N. Morozov, and U. Kh. Rasulev, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* (in press), (2003).

11. Н. А. Иногамов, Письма в *ЖТФ* **10**(13), 769 (1984).

12. А. И. Акишин, В. П. Кирюхин, Л. С. Новиков и др., *ЖТФ* **54**(1), 179 (1984).

13. С. И. Ашитков, М. Б. Агранат, П. С. Кондратенко и др., Письма в *ЖЭТФ* **76**, 538 (2002).

14. B. Rethfeld, K. Sokolowski-Tinten, D. von der Linde, and S. I. Anisimov, *Phys. Rev.* **B65**, 092103 (2002).

15. N. M. Bulgakova and A. V. Bulgakov, *Appl. Phys.* **A73**, 199 (2001).

16. A. Miotello and R. Kelly, *Appl. Phys.* **A69**(Suppl.), S67 (1999).

17. Н. А. Иногамов, С. И. Анисимов, Б. Ретфельд, *ЖЭТФ* **115**(6), 2091 (1999).

18. Н. А. Иногамов, А. М. Опарин, Ю. В. Петров и др., Письма в *ЖЭТФ*, **69**(4), 284 (1999).

19. В. В. Жаховский, С. И. Анисимов, К. Нишихара, Н. А. Иногамов, Письма в *ЖЭТФ*, **71**, 241 (2000).

20. С. И. Анисимов, А. М. Бонч-Бруевич, М. А. Ельшевич и др., *ЖТФ* **36**, 1273 (1966).

21. С. И. Анисимов, Б. Л. Капелиович, Т. Л. Перельман, *ЖЭТФ* **66**, 776 (1974).
22. S. I. Anisimov and B. Rethfeld, *Proc. SPIE – Int. Soc. Opt. Eng. (USA)*, **3093**, 192 (1996).
23. B. Rethfeld, A. Kaiser, M. Vicanek, and G. Simon, *Phys. Rev.* **B65**, 214303 (2002).
24. В. В. Жаховский, С. И. Анисимов, *ЖЭТФ* **111** 1328 (1997).
25. V. V. Zhakhovskii, S. V. Zybin, K. Nishihara, and S. I. Anisimov, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1175 (1999).
26. F. H. Ree, *J. Chem. Phys.* **73**, 5401 (1980).
27. Y. Choi, T. Ree, and F. H. Ree, *J. Chem. Phys.*, **99**, 9917 (1993).
28. B. Smit, *J. Chem. Phys.* **96**, 8639 (1992).
29. V. A. Rabinovich, A. A. Vasserman, V. I. Nedostup, and L. S. Veksler, *Thermophysical properties of neon, argon, krypton and xenon*, Hemisphere, Berlin-New York, 1998.
30. Г. И. Канель, С. В. Разоренов, А. В. Уткин, В. Е. Форттов, *Ударно-волновые явления в конденсированных средах*, М.: Янус-К, 1996.
31. С. И. Анисимов, А. В. Бушман, Р. З. Сагдеев и др., *Письма в ЖЭТФ* **39**, 9 (1984).
32. Х. А. Рахматулин, Ю. А. Демьянов, *Прочность при интенсивных кратковременных нагрузках*, М.: Физматгиз, 1961.
33. В. С. Никифоровский, Е. И. Шемякин, *Динамическое разрушение твердых тел*, Новосибирск: Наука, 1979.
34. Н. Х. Ахмадеев, *Динамическое разрушение твердых тел в волнах напряжений*, Уфа: БНЦ УрО АН СССР, 1988.
35. В. Н. Аптуков, П. К. Николаев, А. А. Поздеев, *ДАН СССР* **283**(4), 862 (1985).