

**ДИНАМИКА ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДОВ
И ПЕРЕГРЕТЫХ МЕТАСТАБИЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ
ПРИ НАНО–ФЕМТОСЕКУНДНОМ ЛАЗЕРНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ
НА МЕТАЛЛИЧЕСКИЕ МИШЕНИ**

© 2009 г. *В.И. Мажукин, А.В. Мажукин, М.Г. Лобок*

Институт математического моделирования РАН, Москва
e-mail: immras@orc.ru

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проекты № 09-01-12110-офи_м, № 09-07-00225)

В рамках одномерной многофронтной гидродинамической задачи Стефана, записанной для двух фаз (твердая и жидкая) осуществляется математическое описание импульсного лазерного нагрева, плавления и испарения металлической мишени в среду с противодействием. На границе раздела конденсированной и газовой сред задача Стефана сопряжена с системой уравнений радиационной газовой динамики с теплопроводностью, описывающей процессы в испаренном веществе и воздухе. Для численного решения применялся конечно-разностный метод динамической адаптации, позволяющий производить расчеты с явным выделением межфазных границ и ударных волн. В результате по пространству задача содержала шесть расчетных областей с семью границами, из которых шесть – подвижные, включая две ударные волны и правую свободную границу в воздухе.

Сформулированная модель использовалась для расчетов лазерного воздействия с $\lambda=0.8$ мкм, $\tau=10^{-8}\div 10^{-15}$ с и $G_0=10^9\div 10^{16}$ Вт/см² на мишень из Al. Моделирование показало, что при воздействии длинных ~ 1 нс импульсов большая часть лазерной энергии тратится на плавление и нагрев жидкости. Толщина расплава достигает величины 1.2 мкм. В фемтосекундных импульсах большая часть энергии расходуется на нагрев твердого тела и формирование ударной волны в твердом теле. Характерная толщина расплава не превышает 0.03 мкм. В то же время толщины испаренного вещества примерно одинаковы для обоих видов импульсов.

Для наносекундных импульсов плазма в испаренном веществе не образуется, если плотность излучения J меньше чем 30 Дж/см². При тех же значениях J для фемтосекундных импульсов плазма возникает после окончания воздействия и носит термический характер.

**MATHEMATICAL MODELING OF DYNAMICS OF FAST PHASE TRANSITIONS
AND OVERHEATED METASTABLE STATES DURING NANO-
AND FEMTOSECOND LASER TREATMENT OF METAL TARGETS**

V.I. Mazhukin, A.V. Mazhukin, M.G. Lobok

Institute of Mathematical Modeling of RAS, 4a Miusskaya sq., 125047 Moscow, Russia
immras@orc.ru

For mathematical description of pulsed laser heating, melting and evaporation of aluminium target in ambient atmosphere was used one dimensional, multi front hydrodynamic Stephan problem, written for both phases (liquid and solid). On the boundary of solid and gaseous forms Stephan problem is combined with radiation gas dynamic equations, with thermo conductivity, and describes processes in evaporated material and surrounding gas. For numerical solution finite difference dynamic adaptation method, which gives opportunity of explicit tracking of inter phase boundaries and shockwaves. As a result, in the process of the solution the problem had 6 computation regions and 7 boundaries, 6 of them were moving, including 2 shockwaves and free boundary in atmosphere.

We used this model to calculate pulsed laser interaction with aluminum target with following parameters: $A=0.8$, $\tau = 10^{-8}\div 10^{-15}$ s and $G_0=10^9\div 10^{16}$ W/cm². Modeling revealed that in case of long ~ 1 ns pulses greater part of the energy is spend on melting and heating of the liquid. Molten pool depth is about 1.2 μ m.

In case of femtosecond pulses greater part of the energy is spend on heating of the solid and for the formation of shockwave in solid. The depth of the molten pool does not exceeds $0.03\mu\text{m}$. Although evaporated layers were almost the same thickness.

For nanosecond laser pulses with fluence J less than 30 J/cm^2 there is no plasma formation in the evaporated material. For the same fluence for femtosecond laser pulse plasma is formed after the pulse and has thermal nature.

1. Введение

Важнейшими параметрами воздействия при импульсной лазерной обработке материалов наряду с длиной волны λ являются интенсивность G и длительность импульса τ . Два процесса абляции материала и плазмообразование занимают в лазерной обработке доминирующее положение [1]. В случае образования плазмы динамика этих процессов оказывается взаимосвязанной [2].

Воздействие пико- и фемтосекундных лазерных импульсов большой интенсивности $G=10^{15}\div 10^{18}\text{ Вт/см}^2$ на твердотельные мишени является одним из способов создания лазерной плазмы с уникальными характеристиками. Тонкий, толщиной $\ell\sim 0.1\mu\text{м}$, плазменный слой, образующийся на поверхности твердотельной мишени сверхсильным световым полем, имеет высокую электронную температуру $T\sim 100\text{ эВ}$, большую плотность заряженных частиц $N_e\sim 10^{22}\div 10^{23}\text{ см}^{-3}$ и высокие градиенты электронов и ионов. Такая плазма является источником мощного рентгеновского излучения [3], [4], что и является одной из причин повышенного интереса к ней.

Импульсная лазерная абляция металлов лежит в основе ряда широко используемых технологий, таких как сверление, резка, микро- и наноструктурирование, напыление тонких пленок и т.д. [5]. Плазма и её эволюция в приложениях, основанных на лазерной абляции, в большинстве случаев играют скорее негативную роль, но могут представлять самостоятельный интерес.

Воздействие длинных и коротких импульсов качественно различаются механизмами превращения энергии лазерного излучения и выноса вещества из зоны облучения. В миллисекундном диапазоне длительности основные механизмы выноса вещества связаны с гидродинамическими явлениями: термокапиллярностью, давлением отдачи и др. [6]. Отличительной чертой гидродинамических механизмов является неустойчивость ряда процессов [7].

В микросекундном и субмиллисекундном диапазонах наряду с гидродинамическими явлениями отмечается важная роль фазовых переходов: плавления и испарения. Как показало моделирование [8], преобладание того или иного процесса во многом зависит от временной формы импульса. Если вклад энергии носит ускоряющийся характер (возрастающий треугольник) или достигается стационарность процессов (прямоугольная форма импульса), то доминирующим является механизм испарения и для толщин расплава Δ_ℓ и испаренного вещества Δ_{ev} выполняется соотношение $\Delta_\ell/\Delta_{ev}\ll 1$. Для импульсов с ниспадающим временным профилем (ниспадающий треугольник) и временной формой, не содержащей постоянной составляющей (гауссовский профиль) доминирующим является плавление и $\Delta_\ell/\Delta_{ev}\gg 1$.

В наносекундном диапазоне усиливается роль испарения и лазерной плазмы [9], [10]. В ряде режимов конкурирующим с поверхностным испарением становится объёмное вскипание [11].

Лазерная абляция в пико- и фемтосекундном диапазонах является наименее изученной. В то же время количество публикаций в этой области неуклонно растёт, что свидетельствует о повышенном интересе к воздействию ультракоротких лазерных импульсов большой интенсивности на конденсированные среды [12, 13]. Большинство этих работ посвящено экспериментальным наблюдениям [14–16]. В значительно меньшем количестве работ были предприняты попытки теоретического объяснения фундаментальных явлений, сопровождающих ультракороткое воздействие [17–19].

Основные особенности ультракороткого воздействия на металлы связаны с высокой скоростью и объёмным характером выделения энергии лазерного импульса. Высокая скорость нагрева конденсированной среды сопряжена с быстрыми фазовыми трансформациями вещества, характеризующиеся переносом через фазовые границы мощных потоков массы и энергии. Вынос энергии потоком вещества в совокупности с объёмным механизмом выделения энергии лазерного излучения способствуют нагреву поверхностей раздела фаз до температур, значительно превышающих равновесные значения температур плавления T_{m0} и испарения T_b . В силу тех же причин вблизи облучаемых поверхностей в твёрдой и жидкой фазах формируются области температурных максимумов.

Перегретые метастабильные состояния вначале рассматривались и были зафиксированы в наносекундном диапазоне воздействия [20]. В одной из первых работ [21] экспериментально был определен перегрев твёрдой фазы на $40 \div 110$ К относительно температуры T_{m0} при воздействии на кремний лазерного импульса длительностью 26 нс. В теоретических работах [22, 23] с помощью математического моделирования была исследована динамика перегретых метастабильных состояний в сверхпроводящей керамике, облучаемой импульсами наносекундной длительности. Максимальный перегрев твёрдой фазы относительно температуры T_m составил 150 К.

По мере развития лазерной техники появились сообщения [24] и статьи [25–27] о наблюдении перегретых метастабильных областей в пико- и фемтосекундном диапазонах воздействия.

Обобщая результаты экспериментальных исследований [15] сверления металлов ультракороткими импульсами отметим их следующие особенности и преимущества:

- с переходом от нано- к фемтосекундным длительностям уменьшается доля жидкой фракции и растёт качество отверстия;

- при плотности энергии лазерного импульса $J \leq 5$ Дж/см² пико- и фемтосекундной длительности не происходит образования плазмы;

- эффекты теплопроводности не существенны во временном масштабе импульса;

- средняя толщина испарённого слоя при $J \leq 1$ Дж/см² не превышает 100 нм.

Следует отметить особую роль, которую играет в формировании макропроцесса в целом динамика сложных взаимосвязанных процессов в конденсированной и газовой средах. Так динамика процессов в плазме тесно связана с процессами нагрева, охлаждения и фазовых трансформаций в облучаемой мишени. А теплопроводность и абляция определяют динамику остывания плазмы после действия лазерного импульса. В то же время исследование динамики процессов, особенно в случае применения ультракоротких импульсов, сопряжено с трудно преодолеваемыми ограничениями. Как правило, экспериментальные наблюдения представляют собой результаты последствия, что недостаточно для понимания, почему в результате воздействия система попадает в то или иное состояние. В этих условиях резко возрастает роль и удельный вес в исследованиях методов математического моделирования.

Данная работа посвящена математическому моделированию динамики фазовых переходов, перегретых метастабильных состояний и сравнительному анализу основных характеристик лазерной абляции в нано- фемтосекундном диапазоне воздействия.

2. Постановка задачи

Лазерное излучение распространяется справа налево и, попадая на поверхность металлической мишени, частично поглощается и частично отражается (рис.1). Там же на рис.1 изображено пространственное положение фаз, межфазных границ Γ_{sl} , Γ_{lv} и ударных волн $\Gamma_{sh,s}$, $\Gamma_{sh,g}$.

Постановка задачи осуществлялась при следующих предположениях и ограничениях:

- выделение энергии лазерного излучения относительно решетки мишени происходит мгновенно;

фазовые превращения носят термический характер;
 механизмы объёмного плавления и испарения не рассматриваются. Полагается, что фронт плавления возникает на облучаемой поверхности в момент достижения температуры T_{m0} ;
 перегретые метастабильные состояния в течение рассмотрения ведут себя устойчиво.

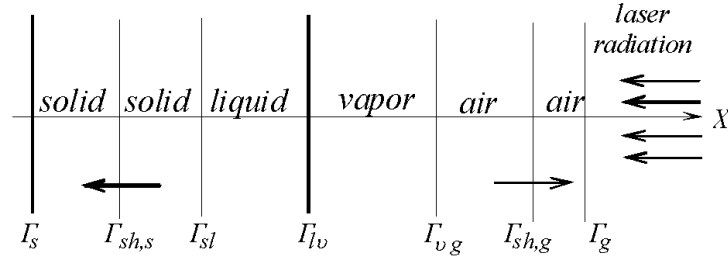


Рис.1. Схема пространственного положения фаз.

Математическое описание и моделирование лазерной абляции твердой алюминиевой мишени в среде с противодавлением осуществляется в рамках одномерной многофронтной гидродинамической задачи Стефана, записанной для двух фаз – твердой и жидкой. Задача Стефана сопряжена с системой уравнений радиационной газовой динамики с теплопроводностью, описывающей процессы в испаренном веществе и газовой среде (воздух):

$$\left[\begin{array}{l}
 \frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u)}{\partial x} = 0 \\
 \frac{\partial(\rho u)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u^2)}{\partial x} + \frac{\partial P}{\partial x} = 0 \\
 \frac{\partial(\rho \varepsilon)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u \varepsilon)}{\partial x} = - \left(P \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial W_T}{\partial x} + \frac{\partial W_I}{\partial x} + \frac{\partial G}{\partial x} \right) \\
 \frac{\partial I_v}{\partial x} + \kappa(h\nu, \rho, T) I_v = \kappa(h\nu, \rho, T) I_{v,eq} \\
 W_v = \int_0^1 \int_{-1}^1 \mu I_v d\nu d\mu, \quad W_T = -\lambda(T) \frac{\partial T}{\partial x} \\
 \frac{\partial G}{\partial x} - \kappa_L(\rho, T) G = 0 \\
 P = P(\rho, T), \varepsilon = \varepsilon(\rho, T)
 \end{array} \right]_k, \quad k = s, l, v, g \quad (1)$$

$$t > 0, \quad x \in [\Gamma_s, \Gamma_{sh,s}(t)] \cup [\Gamma_{sh,s}(t), \Gamma_{sl}(t)] \cup [\Gamma_{sl}(t), \Gamma_{lv}(t)] \cup [\Gamma_{lv}(t), \Gamma_{vg}(t)] \cup \\
 \cup [\Gamma_{vg}(t), \Gamma_{sh,g}(t)] \cup [\Gamma_{sh,g}(t), \Gamma_g(t)].$$

Принятые обозначения: ρ , u , ε , T , P – плотность, газодинамическая скорость, внутренняя энергия, температура и давление вещества соответственно, \varkappa и I_v – коэффициент поглощения и спектральная плотность излучения плазмы, $I_{kv,eq}$ – плотность равновесного излучения, κ_L и G – коэффициент поглощения и плотность лазерного излучения, λ – коэффициент теплопроводности. Индексы s , l , v , g обозначают принадлежность величин соответственно к твердой, жидкой, парообразной и воздушной средам.

Пространственное положение фаз изображено на рис.1.

Граничные условия

1. Левая неподвижная граница

$$x = \Gamma_s : \quad u = 0, \quad W_T = 0, \quad W_I = 0. \quad (2)$$

2. Плавление-кристаллизация $x = \Gamma_{sl}$: на плавящейся границе формулируются 3 закона сохранения – массы, импульса и энергии, записанные в системе координат, движущейся со скоростью твердой фазы $v_{sl} = v_{sl}^* - u_s$, где v_{sl}^* – скорость распространения фронта плавления-кристаллизации в неподвижной (лабораторной) системе координат:

$$\rho_s v_{sl} = \rho_l (u_l - u_s - v_{sl}), \quad (3)$$

$$P_s + \rho_s v_{sl}^2 = p_l + \rho_l (u_l - u_s - v_{sl})^2, \quad (4)$$

$$W_\ell^T - W_s^T = \rho_s v_{sl} L_m^{ne}, \quad (5)$$

где $W_s = -\lambda(T_s) \frac{\partial T_s}{\partial x}$, $W_\ell = -\lambda(T_\ell) \frac{\partial T_\ell}{\partial x}$, C_{ps}, C_{pl} – теплоемкость твердой и жидкой фаз соответ-

ственно, $L_m^{ne} = L_m + (C_{pl} - C_{ps})(T_{sl} - T_m) + \frac{\rho_s + \rho_l}{\rho_s - \rho_l} \frac{(u_s - u_l)^2}{2}$ – неравновесная теплота плавления.

Закон сохранения энергии (5), представляющий собой дифференциальное условие Стефана, дополняется феноменологическим условием равенства температур на границе раздела

$$T_{sl} = T_s = T_l = T_m(P_s). \quad (6)$$

Температура плавления T_m полагалась зависящей от давления: $T_m(P_s)$.

3. Испарение $x = \Gamma_{lv}$: на испаряющейся поверхности формулируются 3 закона сохранения в системе координат, движущейся со скоростью движения твердой фазы $v_{sl} = v_{sl}^* - u_s$:

$$\rho_\ell v_{lv} = \rho_v (u_\ell - u_v + v_{lv}), \quad (7)$$

$$P_\ell + \rho_\ell v_{lv}^2 = p_v + \rho_v (u_\ell - u_v + v_{lv})^2, \quad (8)$$

$$W_\ell^T - W_v^T = -\rho_\ell v_{lv} L_v^{ne}, \quad G = A(T)G_\ell, \quad W_v = W_v^\ell, \quad (9)$$

где $L_v^{ne} = L_v^e(T_l) + C_{pv}(T_b - T_{lv}) + \frac{\rho_l + \rho_v}{\rho_l - \rho_v} \frac{(u_l - u_v)^2}{2}$ – неравновесная теплота испарения. Величи-

ны T_v, ρ_v, p_v определяются из соотношений на неравновесном кнудсеновском слое по модифицированной модели Крута [28]:

$$T_v = \alpha_T(M)T_\ell, \quad \rho_v = \rho_H \cdot \alpha_\rho(M), \quad (10)$$

где $\alpha_T(M)$, $\alpha_\rho(M)$ – коэффициенты Крута, $M = u_v / u_{sh}$ – скорость истечения паров, выраженная в числах Маха; $\rho_H, P_H(T_\ell)$ – плотность и давление насыщенных паров при температуре T_ℓ .

В качестве исследуемого материала рассматривалась алюминиевая мишень толщиной ~ 30 мкм, находящаяся в воздухе с температурой $T_0=273$ К и давлением $P_0=1$ бар. В качестве теплофизических параметров использовались значения, соответствующие твердой и жидкой фазам алюминия. Равновесная температура плавления составляет $T_{m,0} = 933$ К. В качестве функции $T_m(P_s)$

использовалась экспериментальная зависимость [29], аппроксимируемая линейным соотношением $T_m(P_s) = (T_{m,0} + kP_s)$, где $k = \partial T_m / \partial P_s = 2 \cdot 10^{-4} \text{ К/бар}$. Критическая температура для алюминия полагалась равной $T_{cr} = 8 \cdot 10^3 \text{ К}$. Начиная с температуры $T = 0.85 T_{cr}$, в зависимости коэффициентов теплопроводности и поглощения лазерного излучения вводилось их экспоненциальное уменьшение и экспоненциальное увеличение теплоемкости до значений в критической точке: $\lambda_{cr} = 0.01 \text{ Дж/(К}\cdot\text{см)}$, $\alpha_{cr} = 10^3 \text{ см}^{-1}$ и $C_{cr} = 10.200 \text{ Дж}\cdot\text{с/(г}\cdot\text{К)}$. В качестве уравнения состояния используется широкодиапазонное уравнение состояния [30].

3. Вычислительный алгоритм

Численное решение дифференциальной задачи (1)–(9) осуществлялось при помощи конечно-разностного метода с динамической адаптацией [31], позволяющего производить расчеты с явным выделением межфазных границ и ударных волн. В результате количество расчетных областей может достигать до шести, при этом число границ будет равно семи, из которых шесть – подвижные, включая две УВ и правую свободную границу в воздухе.

4. Результаты моделирования

Сформулированная модель использовалась для моделирования ряда режимов лазерного воздействия с длиной волны $\lambda = 0.8 \text{ мкм}$, гауссовским по времени распределением интенсивности $G(t) = G_0 \exp(-t/\tau)^2$, длительностью $\tau = 10^{-8} \div 10^{-15} \text{ с}$ и пиковой интенсивностью $G_0 = 10^8 \div 10^{16} \text{ Вт/см}^2$. Во временном распределении лазерного импульса $-\infty < t < \infty$, моменту времени $t = 0$ соответствует максимум интенсивности, а в качестве начала расчетов использовался момент времени $t = -4\tau$. В расчетах плотность энергии $J = G_0 \cdot \tau$ менялась в диапазоне $1 \leq J \leq 50 \text{ Дж/см}^2$, поглощательная способность поверхности $A = 10\%$. Моделирование показало, что плазма в испаренном веществе образуется для $J > 30 \text{ Дж/см}^2$ (пороговое значение для плазмы $J_{\max} = 30 \div 50 \text{ Дж/см}^2$). Так как плазма замедляет процесс испарения, основное внимание уделялось доплазменным режимам.

Выделение энергии. Выделение энергии лазерного излучения в конденсированной среде в зависимости от режима воздействия, теплофизических и оптических свойств мишени может происходить объёмно или поверхностно. Если длина теплового влияния $l_T = (a\tau)^{0.5}$ много больше длины свободного пробега $l_v = \alpha^{-1}$ кванта излучения $l_T \gg l_v$, где a – коэффициент температуропроводности, α – коэффициент поглощения, то поглощение лазерного излучения носит поверхностный характер. В противоположном – объёмный. В режимах с фазовыми трансформациями длина теплового влияния оценивается выражением $l_T = a/v$, где v – скорость движения фазового фронта (плавление, испарение). Так при скорости $v \geq (10 \div 10^2) \text{ мкс}^{-1}$, соответствующей типичным значениям скорости фазовых переходов в наносекундном диапазоне даже в металлических мишенях реализуются режимы объёмного выделения энергии излучения, $a\alpha/v \leq 1$.

Согласно этим элементарным оценкам наносекундный режим воздействия на металлы является переходным, при котором происходит смена поверхностного механизма поглощения объёмным. В пико- и фемтосекундном диапазоне поглощение заведомо является объёмным, так как $l_T \ll l_v$. Таким образом, в рассматриваемых режимах воздействия выделение энергии в конденсированной среде происходит объёмно. Под совместным воздействием объёмного поглощения лазерного излучения и энергии, выносимой потоком вещества через фазовые границы в обеих фракциях мишени (жидкой и твёрдой) создаются условия для формирования приповерхностных температурных максимумов и возникновения сильно перегретых метастабильных состояний.

Общие процессы. Часть явлений в конденсированной и газовой среде, вне зависимости от длительности лазерного импульса, всегда присутствует в рассмотрении. Общим для всех режимов воздействия является наличие фазовых переходов: плавления и испарения, перегретых метастабильных состояний и ударной волны в газовой среде. Указанные особенности характерны как для нано-, так и для пико- фемтосекундных импульсов.

Однако по мере перехода от длинных наносекундных импульсов к ультракоротким пико- и фемтосекундным изменяется не только динамика фазовых переходов и метастабильных состояний, но и происходит появление новых явлений – ударных волн в твёрдой фазе и процессов плазмообразования в испарённом веществе или газовой среде. Возникновение низкотемпературной плазмы ($5 \cdot 10^3 < T_{\max} < 10^4$ К) термического происхождения происходит после окончания лазерного импульса. Обусловлено оно силами газодинамического сжатия и связано с распространением интенсивной ударной волны, генерируемой мощным потоком пара.

Конденсированная среда. Наибольший интерес с точки зрения прикладных приложений представляет динамика фазовых переходов (плавление, испарение) и особенности их поведения в зависимости от длительности лазерного импульса. Уменьшение длительности лазерного импульса при той же плотности энергии сопровождается ростом скорости нагрева и, соответственно, увеличением скорости v_{sl} и, как известно [32], при $t \rightarrow 0$ скорость фронта плавления $v_{sl} \sim t^{-1/2} \rightarrow \infty$. Однако реальная скорость плавления всегда остается конечной величиной. Одним из эффективных механизмов ограничения скорости v_{sl} является гидродинамика расплава [33]. Её влияние проявляется, в частности, в зависимости температуры плавления $T_m = T_m(P_s)$ от давления на плавящейся поверхности P_s , величина которого определяется значением скорости v_{sl} . В итоге рост скорости v_{sl} приводит к росту давления P_s и температуры на межфазной границе $T_{sl} = T_m(P_s)$, а увеличение температуры плавления $T_m = T_m(P_s)$ ограничивает рост скорости v_{sl} .

Вклад перегретых метастабильных состояний возрастает с уменьшением τ и во многом определяет динамику фазовых переходов. Типичный пример пространственной структуры решения при ультракоротком $\tau = 10$ фс, $J = 1$ Дж/см² воздействии на момент формирования ударных волн в твёрдой фазе и газовой среде $t \approx 80$ фс представлен на рис.2.

Момент возникновения плавления определялся нагревом поверхности мишени до равновесной температуры плавления $T_{m,0}$. При её достижении в рассмотрение вводилась жидкая фаза, начальная толщина которой составляла $\sim (0.2 \div 2) \text{ \AA}$. Объёмный механизм поглощения излучения и поток вещества через межфазную границу $x = \Gamma_{sl}$ формируют в твёрдой фазе приповерхностный температурный максимум.

По мере дальнейшего нагрева поверхности мишени до температуры, при которой давление насыщенного пара на поверхности жидкости начинает превышать давление в воздухе, в рассмотрение вводится второй фазовый переход – поверхностное испарение. Интенсивное поверхностное испарение совместно с объёмным выделением энергии лазерного излучения формируют в жидкости на некотором расстоянии от фронта испарения второй приповерхностный максимум температуры, рис.2. Положение максимумов температуры в твердой и жидкой фазе определяется соотношением скорости движения фазовых фронтов и коэффициентов температуропроводности и поглощения [17]. Так как между максимальными значениями скоростей v_{sl} и v_{lv} выдерживается соотношение $v_{sl} \gg v_{lv}$ (рис.3), то значение максимума температуры в твердом теле намного превосходит максимум температуры в жидкости.

Основная особенность пороговых для абляции режимов $\tau < 10^{-10}$ с и $0.1 < J < 1$ Дж/см² состоит в том, что толщина жидкой фазы не превышает $100 \div 200 \text{ \AA}$ и она прозрачна для лазерного излучения. Энергия лазерного импульса почти полностью поглощается твердой фазой, вызывая её значительный перегрев ($T_{s,\max} \sim 2000 \text{ К}$). Запасенная энергия в основном затрачивается на нагрев и плавление твердой фазы. Поэтому процесс плавления протекает более эффективно, а роль испарения при низких плотностях энергии $0.1 < J < 1$ Дж/см² незначительна. Для усиления процесса абляции в пикосекундном диапазоне необходимо увеличение поглощаемой плотности энергии до $J > 1$ Дж/см².

В диапазоне ультракоротких импульсов ($10^{-12} < \tau \leq 10^{-15}$) при $1 \leq J \leq 10$ Дж/см² быстрый нагрев мишени, высокая скорость плавления и относительно медленная передача энергии за счет теплопроводности приводят к существенно большему перегреву твердой фазы по сравнению с длинными наносекундными импульсами. Максимальная скорость фронта плавления при $\tau \approx 10^{-13} \div 10^{-15}$ с достигает скорости звука в твердом теле, которая для алюминия составляет $\sim 6.26 \cdot 10^5$ см/с. Приближение скорости v_{sl} к скорости звука, с одной стороны, создает условия для возникновения ударной волны в твердой фазе, а с другой – способствует её максимальному перегреву, рис.2. На момент образования $t \approx 80$ фс ударных волн в газовой и твердой фазе максимум температуры в твердом теле при $\tau = 10$ фс и $J = 1$ Дж/см² находится на глубине $\sim 200 \text{ \AA}$ от границы $\Gamma_{sl}(t)$ и составляет $\sim 6 \cdot 10^3 \text{ К}$. Степень перегрева $T_{s,\max}/T_{m0}$ достигает величины ~ 6.5 . Соответственно скорость, температура и давление на границе раздела фаз $\Gamma_{sl}(t)$ равняются $v_{sl} \approx 4 \cdot 10^3 \text{ мс}^{-1}$, $T_{sl} \gg T_{m0} \approx 1.5 \cdot 10^3 \text{ К}$ и $P_s \approx 0.5 \text{ МБар}$. Указанных давлений оказывается достаточно для возбуждения сильной ударной волны в твердой фазе.

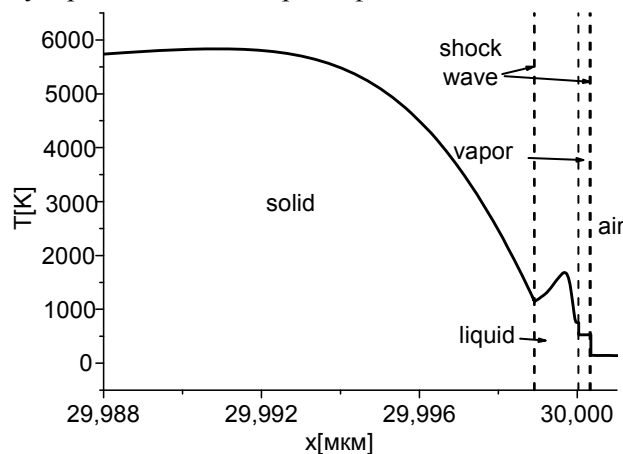


Рис.2. Пространственный профиль температуры в момент $t = 78.5$ фс для режима воздействия $\tau = 10$ фс, $G_0 = 10^{14}$ Вт/см².

Увеличение плотности энергии до $J = 10$ Дж/см² при той же длительности приводит к резкому усилению всех параметров перегрева (рис.3). На рис.3, 4 представлены временные развертки температуры на межфазных границах $T_{surf}(t)$, $T_{sl}(t)$ и фронте ударных волн $T_{sh,s}(t)$, $T_{sh,g}(t)$, а также соответствующие им скорости распространения $v_{sl}(t)$, $v_{lv}(t)$, $v_{sh}(t)$. Из кривых следует, что фазовые переходы и ударная волна в твердой фазе возникают на переднем фронте лазерного импульса. На заднем фронте возникает ударная волна в газовой среде. К середине импульса скорость фронта плавления выходит на своё предельное значение, равное скорости звука

$v_{sl} \cong 6.26 \cdot 10^3 \text{ мс}^{-1}$, обеспечивая степень перегрева $T_{s,max} / T_{m0} \approx 20$.

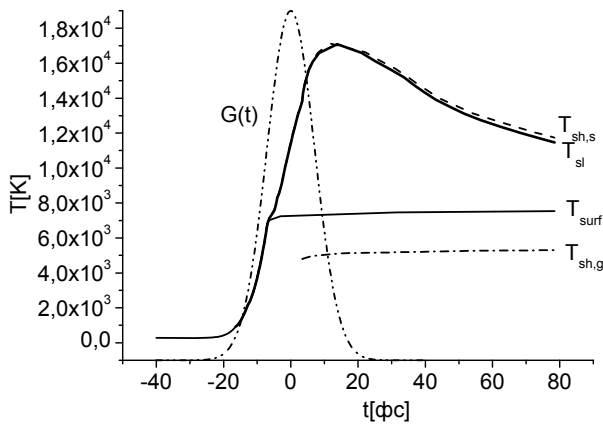


Рис.3. Временные профили температур $T_{sl}, T_{surf}, T_{sh,s}, T_{sh,g}$ на начальные моменты времени и лазерного импульса для режима воздействия с $\tau = 10 \text{ фс}$, $G_0 = 10^{15} \text{ Вт/см}^2$.

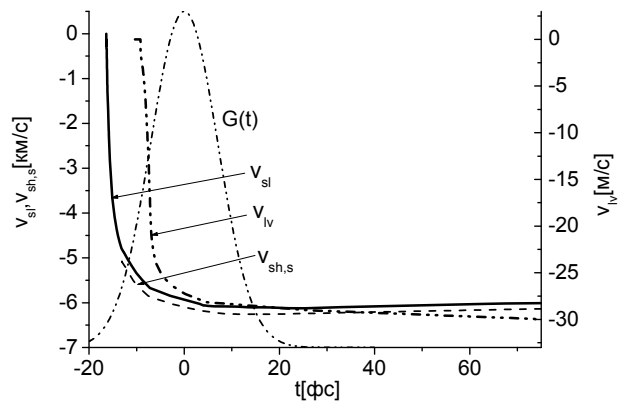


Рис.4. Временные профили скорости фронта плавления v_{sl} , скорости ударной волны $v_{sh,s}$, скорости фронта испарения v_{lv} , лазерного импульса для режима воздействия $\tau = 10 \text{ фс}$, $G_0 = 10^{15} \text{ Вт/см}^2$.

Фронт плавления и фронт ударной волны имеют примерно одинаковые скорости и температуры и распространяются в виде единого комплекса. Запасенная энергия в твердой фазе оказывает стабилизирующее воздействие на температуру испаряющейся поверхности, которая достигает величины $T_{surf} \approx 7 \cdot 10^3 \text{ К}$ и остается неизменной до полного исчезновения перегрева. Также неизменными остаются и скорости распространения ударных волн и фазовых фронтов (рис.4). К моменту $t \approx 2.5 \cdot 10^{-8} \text{ с}$ избыточная энергия полностью выносится из зоны перегрева и пространственное распределение температуры уже не содержит приповерхностных максимумов (рис.5). Столь длительное по сравнению с длительностью лазерного импульса перераспределение энергии определяется доминированием относительно медленного кондуктивного механизма переноса. Именно медленным перераспределением энергии объясняются большие толщины расплавленного и удаленного материала. Так фронт плавления в течение времени $t \approx 0.5 \cdot 10^{-8} \text{ с}$ после окончания лазерного импульса движется со скоростью звука совместно с фронтом ударной волны. Со временем по мере уменьшения температурных градиентов в области раздела фаз скорость v_{sl} падает, и единый комплекс из фронтов плавления и ударной волны распадается. Ударная волна становится затухающей, её фронт со скоростью звука уходит далеко вперед (рис.5).

Поверхностное испарение до $t \approx 0.8 \cdot 10^{-8} \text{ с}$ происходит с максимально возможной скоростью, число Маха на внешней границе кнудсеновского слоя $M=1$ (рис.6). К моменту $t = 0.8 \cdot 10^{-8} \text{ с}$ в газовой среде под влиянием сил газодинамического сжатия начинают формироваться плазменные образования, давление которых превышает давление насыщенного пара, что оказывает на поток испаренного вещества тормозящее воздействие. Число Маха непрерывно уменьшается и к моменту времени $t \approx 2.5 \cdot 10^{-8} \text{ с}$ обращается в нуль, $M=0$, рис.6, что формально соответствует окончанию процесса испарения. Прекращение испарения происходит, несмотря на то, что температура поверхности на этот момент $T_{surf} \approx 3700 \text{ К}$ превышает равновесную температуру кипения алюминия $T_b \approx 2730 \text{ К}$.

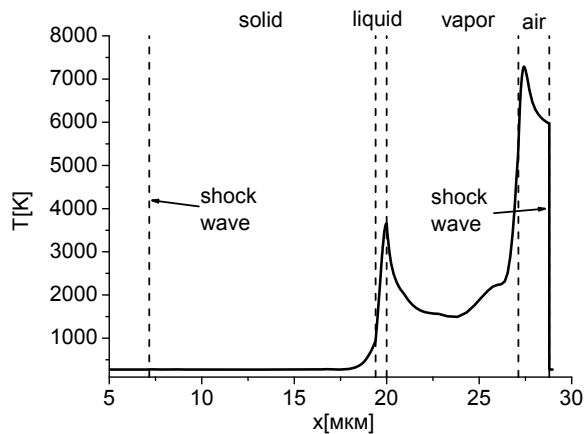


Рис.5. Пространственный профиль температуры в момент $t=2.5$ нс для режима воздействия с $\tau = 10$ фс, $G_0 = 10^{15}$ Вт/см².

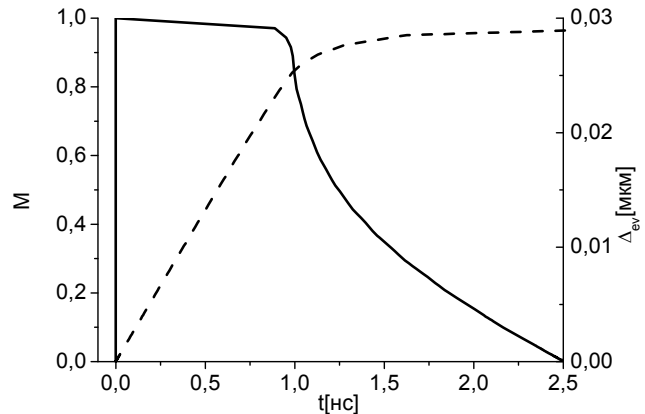


Рис.6. Временные профили скорости испарения в числах Маха на внешней стороне кнудсовского слоя и толщины испаренного слоя для режима воздействия с $\tau = 10$ фс, $G_0 = 10^{15}$ Вт/см².

В пикосекундном диапазоне воздействия наблюдается примерно такая же картина процессов, о чём свидетельствует пространственное распределение температуры в момент $t \approx 2.5 \cdot 10^{-8}$ с (рис.7). За время действия лазерного импульса в рассматриваемом диапазоне длительности успевает появиться сравнительно небольшое количество жидкости. Толщина жидкой фазы в течение действия импульса не превышает 300 \AA . Из-за просветления в околоскритической области она практически прозрачна для лазерного излучения. В результате в жидкости по пространству устанавливается почти постоянная температура $T_{sl} \approx T_{lv}$. После окончания действия импульса запасенная энергия перегрева твердой фазы расходуется на нагрев жидкой фазы и поддержание высокой температуры поверхности. Это обеспечивает большую продолжительность процессов плавления и испарения по сравнению с длительностью лазерного импульса.

Поскольку перенос энергии из перегретой твёрдофазной области в жидкую фазу осуществляется относительно медленным механизмом теплопроводности, характерное время фазовых превращений для пико- и фемтосекундных импульсов оказывается примерно одинаковым и равняется $t = 2.5 \div 3$ нс (рис.8). Приповерхностные максимумы температуры полностью исчезают к моменту $t \sim 2 \div 2.2$ нс (рис.3, 7).

Динамика рассматриваемых фазовых переходов претерпевает существенные изменения с изменением длительности лазерных импульсов. На рис.9, 10 представлены зависимости максимальных значений скоростей плавления v_{sl} , испарения v_{lv} , толщин расплава Δ_l и испаренных слоёв Δ_{ev} от длительности лазерных импульсов. Их анализ показал, что при длинных импульсах $10^{-8} \geq \tau \geq 10^{-9}$ с и плотности энергии $1 \leq J \leq 10$ Дж/см² плавление и испарение протекают по обычной схеме. Температура поверхности $T_{sur} \approx (5.7 \div 7.2) 10^3$ К и скорость поверхностного испарения $|v_{lv}| \approx 10 \div 27 \text{ мс}^{-1}$ с небольшим запаздыванием следуют за изменением интенсивности излучения. Значения максимальной скорости плавления находятся в диапазоне $50 \div 5 \cdot 10^2 \text{ мс}^{-1}$, рис.9. Максимальная толщина расплава возрастает с ростом τ и достигает максимума при $\tau = 10^{-8}$ с, ($\Delta_{liq} \approx 1.9$ мкм) (см. рис.10). Толщина удалённого материала Δ_{ev} более чем на порядок меньше Δ_l (рис.10). Давление на поверхности твёрдой фазы P_s не превышает $4 \cdot 10^3$ бар. Температура T_{sl} на межфазной границе при таком давлении практически не отличается от равно-

весной $T_{sl} \cong T_{m0}$. Приповерхностный максимум температуры находится на некотором расстоянии от межфазной границы Γ_{sl} , и его значение превышает значение равновесной температуры плавления на несколько десятков градусов. Столь незначительный перегрев твёрдой фазы относительно быстро исчезает, не оказывая качественного влияния на процессы плавления и испарения. Его наличие сказывается лишь на увеличении времени жизни расплава и длительности процесса испарения, которое при $\tau \cong 10^{-8}$ с оказывается в 2.5 раза больше длительности τ (рис.8).

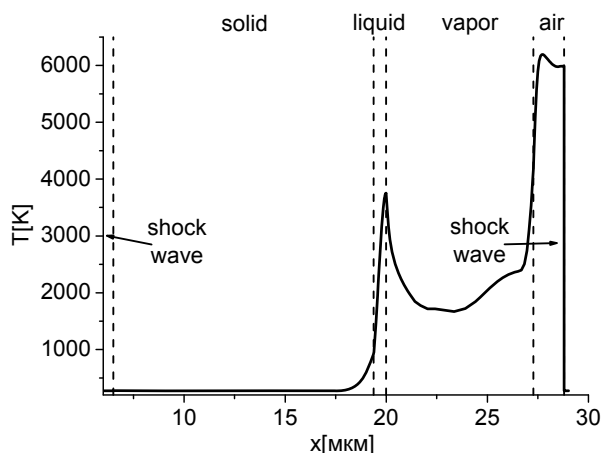


Рис.7. Пространственный профиль температуры в момент $t = 2.5$ нс для режима воздействия $\tau = 1.0$ пс, $G_0 = 10^{13}$ Вт/см².

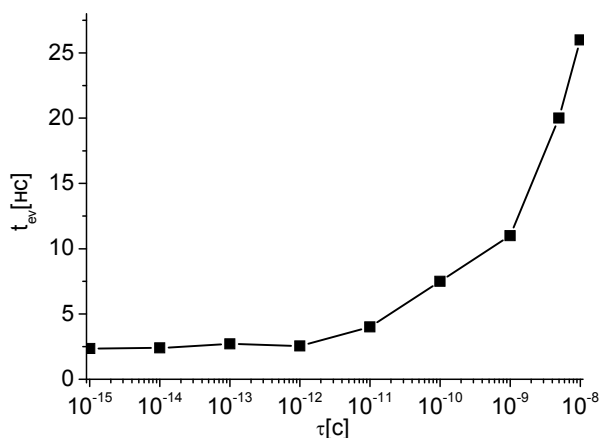


Рис.8. Зависимость длительности испарения от длительности воздействующего импульса.

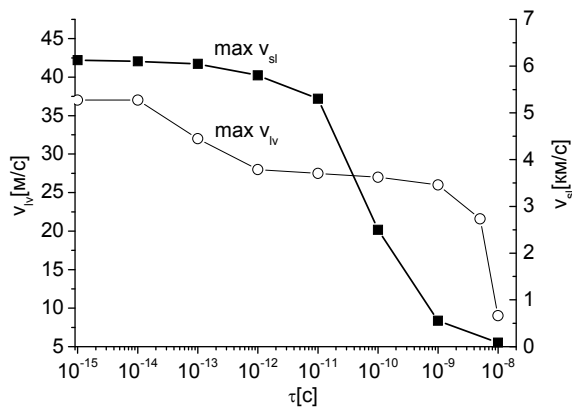


Рис.9. Зависимости максимальных значений скоростей плавления $v_{sl}(\tau)$ и испарения $v_{lv}(\tau)$ от длительности лазерного импульса τ .

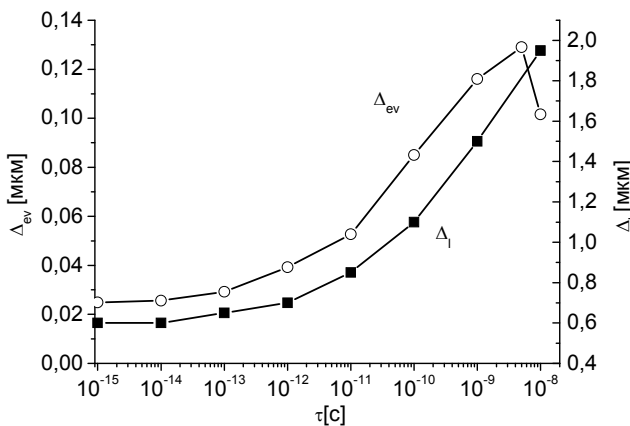


Рис.10. Зависимости толщин расплава $\Delta_l(\tau)$ и испаренного слоя $\Delta_{ev}(\tau)$ от длительности лазерного импульса τ .

Временные зависимости максимальной глубины проплава $\Delta_l(\tau)$ испаренных слоев $\Delta_{ev}(\tau)$ направлены в сторону убывания с уменьшением τ и изменяются в диапазоне $\Delta_l(\tau) \sim (1.95 \div 0.6)$ мкм, и $\Delta_{ev}(\tau) \sim (0.13 \text{ мкм} \div 230 \text{ \AA})$ (см. рис.4). Отметим, что толщина испаренного вещества находится в хорошем согласии с экспериментальными данными [15]. Таким образом, благодаря появлению перегретых метастабильных состояний уменьшение длительности лазерных импульсов на $4 \div 7$ порядков приводит к уменьшению толщин $\Delta_l(\tau)$, $\Delta_{ev}(\tau)$ всего в $3 \div 6$ раз. В силу соотношения $v_{sl} \gg v_{lv}$ (рис.9), глубина проплава $\Delta_l(\tau)$ во всем рассматриваемом временном диапазоне оказывается намного больше толщины испаренного слоя $\Delta_{ev}(\tau)$ и их отношение рав-

няется $\Delta_\ell(\tau)/\Delta_{ev}(\tau) \approx 10 \div 30$ (рис.10). Однако в фемтосекундном диапазоне, где температура метастабильных состояний приближается или превышает критическую температуру, следует с большой вероятностью ожидать смены поверхностного механизма испарения объёмным.

Газовая среда. Состояние пара вблизи границы с жидкостью в доплазменном режиме главным образом определяется температурой на испаряющейся поверхности и теплопроводностью из жидкости. При этом нагрев пара за счет поглощения лазерного излучения, для которого он практически прозрачен, незначителен.

В газовой среде быстро расширяющийся поток пара, скорость которого вблизи контактной границы достигает нескольких километров в секунду, действует как ускоряющийся поршень, выталкивающий холодный воздух. Начиная с определенного момента времени, это приводит к образованию ударной волны в газе. Явно выделенная с помощью условий Рэнкина–Гюгонио ударная волна распространяется навстречу лазерному излучению. Значительно позднее после окончания лазерного воздействия за счёт работы сил сжатия в газовой среде возникает низко-температурная термическая плазма.

Типичный пример пространственной структуры решения, полученный при ультракоротком ($\tau = 10$ фс) воздействии на момент развитого плазмообразования $t \approx 2.5$ нс представлен на рис.2. Максимальная температура плазмы достигает величины $T_{\max} \approx 7400$ К и находится за фронтом ударной волны вблизи контактной границы пар – воздух. Пространственный размер области пара за время действия импульса невелик и составляет $\sim 7 \cdot 10^{-3}$ мкм к концу испарения он достигает величины 7.5 мкм (рис.5).

При достаточно высокой интенсивности лазерного излучения $G > 10^{16}$ Вт/см² в паре вблизи испаряющейся поверхности может возникнуть лазерная плазма, начинающаяся с лавинообразного роста температуры, концентрации заряженных частиц и коэффициента поглощения. Этот процесс образования сильно ионизованной и поглощающей плазмы является равновесным аналогом оптического пробоя. Температура в паре быстро возрастает до 10^6 К, концентрация электронов $N_e \approx 8 \times 10^{22}$ см⁻³, коэффициент поглощения $\alpha \approx 10^5$ см⁻¹. Образуется новая ударная волна, которая, распространяясь в направлении от поверхности, догоняет первую ударную волну в газе и поглощает ее. Уменьшение потока лазерной энергии на поверхности мишени, вызванного ростом коэффициента поглощения при одновременном повышении давления в плазме, приводит к полному прекращению поверхностного испарения.

5. Заключение

Выполненный анализ позволяет сделать вывод о том, что длинные наносекундные и ультракороткие пико- и фемтосекундные импульсы при одной и той же плотности энергии J существенно различаются между собой механизмами превращения энергии лазерных импульсов.

Для длинных импульсов $\tau \sim 10$ нс максимальное значение температуры поверхности ($T_{sur} \approx 5800$ К) достигается с несущественным сдвигом относительно пиковой интенсивности импульса. Небольшой перегрев твёрдой фазы (десятки градусов) способствует увеличению в 2.5 раза времени испарения t_{vap} относительно длительности лазерного импульса τ . Большая часть энергии импульса расходуется на процессы плавления и испарения. Меньшая часть – на нагрев твёрдой фазы и генерацию ударной волны в газовой среде.

С переходом к ультракоротким импульсам всё большая доля энергии лазерных импульсов расходуется на создание перегретых метастабильных состояний в конденсированной среде и генерации ударных волн в твёрдой фазе и газовой среде. Меньшая доля энергии затрачивается на процесс испарения. Так, если при $\tau \sim 10$ нс отношение толщин $\Delta_\ell(\tau)/\Delta_{ev}(\tau)$ не превышало 20, то при $\tau \sim 10$ фс оно достигает 30.

В фемтосекундном диапазоне величина перегрева твердой фазы $T_{s,\max}/T_{m0}$ достигает значений $8 \div 10$, а приповерхностный температурный максимум становится соизмеримым с критической температурой. В этих ситуациях велика вероятность спиноподобного распада метастабильных состояний или зародышеобразования новой фазы, что соответствует смене поверхностных механизмов фазовых трансформаций объёмными.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *W.W. Duley*. UV Lasers: Effects and Applications in Materials Science. Cambridge University Press., 1996, p.407.
2. *V.I. Mazhukin, A.A. Samarskii*. Mathematical Modeling in the Technology of Laser Treatments of Materials. Review. Surveys on Mathematics for Industry, 1994, v.4, № 2, p.85-149.
3. *K. Sokolowski-Tinten, D. von der Linde*. Generation of dense electron-hole plasmas in silicon // Phys. Rev.B, 2000, v.61, p.2643 - 2650.
4. *В.М. Гордиенко, М.С. Джиджоев, В.В. Колчин, С.А. Магницкий, В.Т. Платоненко, А.Б. Савельев, А.П. Тарасевич*. О возможности генерации пико- и субпикосекундных рентгеновских импульсов в тонких плёнках // Квантовая электроника. 1995, т. 22, №2, с.158-160.
5. Laser Ablation. Principles and Applications. Ed.:J.C.Miller, Springer, – Berlin: 1994, p.185.
6. *А.А. Веденов, Г.Г. Гладуш*. Физические процессы при лазерной обработке материалов. – М.: Энергоатомиздат, 1985, 206 с.
7. *А.А. Самохин*. Действие лазерного излучения на поглощающие конденсированные среды // Труды ИОФАН, 1988, т.13, с.1-119.
8. *V.I. Mazhukin, M.G. Lobok, I. Smurov*. Transient effects in pulsed laser irradiation // Appl. Surface Science, 2007, v.253, p.7744–7748.
9. *G.P. Pinho, H. Schittenhelm, W.W. Duley, S.A. Schueter, H.R. Jamani, R.E. Mueller*. Energy Distributions in the Laser Ablation of Metals and Polymers. Appl. Surf. Science, 1998, v.127-129, p.983-987.
10. *V.I. Mazhukin, V.V. Nossov, I. Smurov*. Modeling of plasma-controlled evaporation and surface condensation of Al induced de 1.06 and 0.248 μm laser radiations // Applied Physics, 2007, v.101, Issue 2, p.24922–24937.
11. *A. Peterlongo, A. Miotello, R. Kelly*. E. Laser-pulse sputtering of aluminum: Vaporization, boiling superheating, and gas-dynamic effects // Phys. Rev. 1994, v.50, №6, p.4716–4727.
12. *D. von der Linde*. A picosecond view of melting // Science, 2003, v.302, p.1345-1346.
13. *H. Iglev, M. Schmeisser, K. Simeonidis, A. Thaller, A. Laubereau*. Ultrafast superheating and melting of bulk ice Nature, 2006, v.439, p.183-186.
14. *B.N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. von Alvensleben, A. Tunnermann*. Precise deep drilling of metals by femtosecond laser pulses // Appl. Phys. A, 1996, v.63, p.105-109
15. *M.D. Shirk, P.A. Molian*. A review of ultrashort pulsed laser ablation of materials // J. Laser Application, 1998, v.10, №16, p.18-28.
16. *K. Sokolowski-Tinten, D. von der Linde*. Ultrafast phase transitions and lattice dynamics probed using laser-produced X-ray pulses // J. Phys. Cond. Mat., 2004, v.16, R1517.
17. *D. Boschetto, E.G. Gamaly, A.V. Rode, B. Luther-Davies, D. Glijer, T. Garl, O. Albert, A. Rousse, J. Eichepare*. Small Atomic Displacements Recorder in Bismuth by the Optical Reflectivity of Femtosecond Laser-Pulse Excitations // Phys. Rev. Lett. 2008, v.100, 027404-1 - 027404-4.
18. *E.G. Gamaly, A.V. Rode, V.T. Tikhonchuk, B. Luther-Davies*. Ablation of solids by femtosecond lasers: ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics // Phys. Plasmas, 2002, v.9, p.949-957.
19. *Zh. Lin, L.V. Zhigilei*. Thermal excitation of d band electrons in Au: implications for laser-induced phase transformations // Proc. of SPIE, 2006, v.6261, p. 62610U-1 - 62610U-10.
20. *Ж.И. Алфёров, Ю.В. Ковальчук, Ю.И. Погорельский, О.В. Смольский*. Воздействие пикосекундных лазерных импульсов на Si и полупроводниковые соединения A^3B^5 // Известия АН СССР, Сер. Физ., 1985, т.49, вып.6, с.1069-1075.
21. *X. Xu, C. Grigoropoulos, R.E. Russo*. Measurements of Solid/Liquid Interface Temperature During Pulsed Excimer Laser Melting of Polysilicon Films // Appl. Phys. Lett., 1994, v.65, № 14, p.1745-1747.

22. *V.I. Mazhukin, I. Smurov, G. Flamant, C. Dupuy.* Peculiarities of Laser Melting and Evaporation of Superconducting Ceramics // *J. Thin Solid Films*, 1994, v.241, p.109-113.
23. *V.I. Mazhukin, I. Smurov, G. Flamant.* Overheated Metastable States in Pulsed Laser Action on Ceramics // *J. Appl. Phys.*, 1995, v.78, № 2, p.1259-1270.
24. *S. Williamson, C. Mourou, J.C.H. Li.* Time-Resolved Laser-Induced Phase Transformation in Aluminum // *Phys. Rev. Lett.*, 1984, v. 52, №266, p.2364 - 2368.
25. *M. Kandyła, T. Shih, E. Mazur.* Femtosecond dynamics of the laser-induced solid-to-liquid phase transition in aluminum // *Phys. Rev. B*, 2007, v.75, p.214107-214132.
26. *D.S. Ivanov, L.V. Zhigilei.* Combined atomistic-continuum modeling of short-pulse laser melting and disintegration of metal films // *Phys. Rev. B*. 2003, v.68, p.064114-1-064114-21.
27. *D.S. Ivanov, L.V. Zhigilei.* Channels of energy redistribution in short-pulse laser interactions with metal targets // *Appl. Surface Science*, 2005, v. 248, p.433–439.
28. *В.И. Мажукин, П.А. Прудковский, А.А. Самохин.* О газодинамических граничных условиях на фронте испарения // *Математическое моделирование*, 1993, т. 5, № 6, с.3-10.
29. *J. Lees, B.H.J. Williamson.* Combined very high pressure/ high temperature calibration of the tetrahedral anvil apparatus, fusion curves of Zinc, Aluminum, Germanium and Silicon to 60 kilobars // *Nature, Physics*, 1965, v.208, №5007, p.T84 – T85.
30. *K.S. Holian.* A new equation of state for aluminum // *J. Appl. Phys.*, 1986, 59(1), p.149 - 157.
31. *П.В. Бреславский, В.И. Мажукин.* Динамически адаптирующиеся сетки для взаимодействующих разрывных решений // *Журнал вычислительной математики и математической физики*, 2007, т.47, №4, с.717-737.
32. *Г. Карслоу, Д. Егер.* Теплопроводность твёрдых тел. – М.: Наука, 1964, 448с.
33. *П.В. Бреславский, В.И. Мажукин, А.А. Самохин.* О гидродинамическом варианте задачи Стефана для вещества в метастабильном состоянии // *Доклады АН СССР*, 1991, т.320, №5, с.1088-1092.

Поступила в редакцию 20.11.2008.