

ИССЛЕДОВАНИЕ ЛАЗЕРНОЙ АБЛЯЦИИ ЗОЛОТА С ПОМОЩЬЮ МЕТОДА МОЛЕКУЛЯРНОЙ ДИНАМИКИ

Г.Э. Норман^{1,2}, С.В. Стариков^{1,2}, В.В. Стегайлов^{1,2}

¹ *Объединенный институт высоких температур РАН,
Москва, 125412, Ижорская, д. 13, стр. 2*

² *Московский физико-технический институт (ГУ)
Московская область, 141700, г. Долгопрудный, Институтский переулок, 9*

Аннотация

В настоящей работе проведено атомистическое моделирование абляции золота при облучении металла фемто- и пикосекундными лазерными импульсами. Используется атомистическая модель с явным учетом электронной подсистемы и зависимостью межйонного потенциала от электронной температуры. Использование такого потенциала позволяет учесть изменение физических свойств ионной подсистемы при нагреве электронной подсистемы. Ионная подсистема описывается классической молекулярной динамикой, в то время как электронная подсистема рассматривается в приближении сплошной среды. По результатам моделирования обнаружено существенное различие между характеристиками абляции при разных длительностях лазерных импульсов. Для абляции при субпикосекундном импульсе удается выделить два механизма разрушения металла, связанных с эволюцией давления в системе.

STUDY OF LASER ABLATION OF GOLD BY MOLECULAR-DYNAMICS METHOD

G.E. Norman^{1,2}, S.V. Starikov^{1,2}, V.V. Stegailov^{1,2}

¹ *Joint institute for high temperatures of RAS, Russia, Moscow, 125412*

² *Moscow Institute of Physics and Technology, Russia, Moscow Region, Dolgoprudny, 141700*

An atomistic model of ablation is developed that reveals the ultra-low threshold fluence values of this process to be an effect of the high electronic pressure build-up and the comparatively low electron-ion energy relaxation rate in gold. The calculated ablation depth as a function of irradiation fluence is in good agreement with the experimental data. The atomistic model with electronic-temperature-depended ionic potential is developed. The use of this potential makes it possible to take into account the effect of the electron pressure on the behavior of ions. The two various mechanisms of ablation are found from the results of the simulation at sub-picosecond laser pulse.

1. ВВЕДЕНИЕ

Лазерная абляция имеет множество потенциальных технологических применений в микрообработке и создании поверхностных наноструктур [1–2]. В то же время, механизм лазерной абляции металлов остается не вполне ясным. На это указывают как противоречия в экспериментальных данных, так и отсутствие хорошего согласия между экспериментами и предсказаниями теории. Одним из наиболее изучаемых металлов является золото, которое характеризуется большим, чем остальные металлы, временем релаксации электронной температуры T_e к температуре ионов T_i [3,4]. Поэтому золото является удобным металлом для исследования эффекта двухтемпературности ($T_e \gg T_i$) и построения общей модели лазерной абляции металлов.

Проникновение импульсного лазерного излучения (как правило, оптического диапазона или мягкого рентгена) в вещество приводит к сильному нагреву электронной подсистемы при абляции. Таким образом, процесс лазерной абляции происходит в крайне неравновесном состоянии (двухтемпературного разогретого плотного вещества (warm dense matter), теория которого только начинает развиваться. Нагретая лазерным излучением электронная подсистема начинает обмениваться энергией с ионной подсистемой, что в ре-

зультате приводит к уносу вещества с поверхности. Одной из основных трудностей при теоретическом описании и построении атомистической модели является тот факт, что характерное время установления равновесия между электронами и ионами соизмеримо со временем самой абляции и временами сопутствующих процессов (теплоперенос, фазовые переходы, возникновение ударных волн и др.)

В данной работе была предложена атомистическая двухтемпературная модель абляции золота с потенциалом межйонного взаимодействия, зависящим от T_e (ETD-потенциал от electronic temperature depended). Использование такого потенциала позволяет учесть изменение физических свойств ионной подсистемы при нагреве электронной.

2. МОДЕЛЬ

Используется атомистическая модель, в которой ионная подсистема описывается классической молекулярной динамикой, а электронная подсистема рассматривается в приближении сплошной среды [3–5]. Таким образом, выполняется явный учет электронной подсистемы. Межйонный потенциал имеет параметрическую зависимость от электронной температуры. Данный ETD-потенциал разработан по методу “согласование по силам”. Эта процедура заключается в рас-

чете сил, действующих на ионы, в различных структурах с помощью *ab initio* расчетов и последующем поиске эффективного межзонного потенциала, наилучшим образом воспроизводящего эти силы. Таким образом, разработанный потенциал является согласованным с квантовыми расчетами по силам. Использование такого потенциала позволяет учесть изменение физических свойств ионной подсистемы при нагреве электронной подсистемы. В частности, учитывается возникновение электронного давления в системе.

В нашей модели, в уравнение движения иона входят три вида сил :

$$m \frac{dv}{dt} = F(T_e) + F_L(T_i, T_e) - \frac{\nabla P_e}{n_i},$$

где первая сила определяется ЕТD-потенциалом. Вторая сила является случайной силой Ланжевеновского термостата, обеспечивающего передачу тепловой энергии от электронной подсистемы к ионной подсистеме [3–5]. Последнее слагаемое в формуле представляет собой силу увлечения газа делокализованных электронов [6], где P_e и n_i – давление делокализованной энергии электронов (подобно давлению газа свободных электронов) и ионная концентрация.

Расчетная ячейка имела размеры 2108 нм в направлении x , 28.6 нм в направлении y и 8.2 нм в направлении z . Использовались периодические граничные условия вдоль направлений y и z . Ионы золота на начальной стадии моделирования формировали решетку в половине расчетной ячейки ($1054 < x < 2108$ нм). В моделировании использовалось 14422800 иона. Открытая поверхность кристалла была перпендикулярна оси x . Лазерный импульс, падающий на поверхность металла, нагревал электронную подсистему, которая описывалась уравнением теплопроводности с источником. Моделировались различные импульсы, различающиеся по длительности и глубине проникновения.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

По результатам моделирования обнаружено существенное различие между характеристиками абляции при разных длительностях лазерных импульсов. Абляция золота при малых энергокладах связана с релаксацией электронного давления. Такой процесс назван “короткой” абляцией, в противоположность “длинной” абляции, которая обычно возникает при больших энергокладах и связана с формированием ударной волны и волны разгрузки. “Короткая” абляция протекает быстрее и на меньших пространственных и временных масштабах, чем “длинная” абляция. Однако явно различить эти два механизма абляции удалось только в расчетах с длительностью лазерного импульса меньшим, чем 1 пс.

Быстрое достижение области отрицательных давлений при “короткой” абляции происходит в первую очередь из-за быстрого первоначального темпа расширения металла вблизи поверхности. Это вызвано тем, что в начальный момент времени в приповерхностном слое существует высокое давление, обусловленное высокой электронной температурой. Образование области с отрицательным давлением и унос вещества происходят в результате суммарного действия двух

процессов, снижающих давление. Первый из этих процессов – механическое расширение, происходящее с большой скоростью, когда электронное давление еще велико. Второй процесс, ответственный за образование отрицательного давления – снижение электронной температуры вследствие релаксационных процессов и соответствующее изменение межзонного потенциала и исчезновение электронного давления. Процесс модификации поверхности золота при “короткой” абляции в целом похож на наноструктурирование металла при “длинной” абляции. Основное различие заключается в том, что при “короткой” абляции средняя глубина кратера на поверхности меньше, чем при “длинной” абляции. Пороговое значение поглощенного потока энергии F_{abs} для “короткой” абляции было найдено равным приблизительно 50 мДж/см² при длительности импульса 0.1 пс и глубине поглощения 6 нм (характерное значение для оптического импульса в золоте).

В расчетах с субпикосекундными импульсами при достижении F_{abs} в 140 мДж/см² вместе с механизмом “короткой” абляции начинает реализовываться механизм “длинной” абляции. Таким образом, зависимость глубины кратера d от F_{abs} имеет особенность, которая выражается в наличии второго порога (резкое изменение угла наклона). Детально механизм “длинной” абляции рассмотрен в работе [5]. Данный тип абляции происходит на более поздних временах и связан с формированием и распространением ударной волны вглубь вещества

Для расчетов с длительностью лазерного импульса большим, чем 1 пс выделить два отдельных механизма не представляется возможным. В данном случае отсутствует один из главных факторов “короткой” абляции – существенное различие во временах нагрева и электрон-ионной релаксации золота. Процесс откола происходит в результате суммарного действия механизмов, задействованных и в “короткой” и в “длинной” типах абляции. Это приводит к плавному росту глубины кратера при увеличении энергоклада. Надо заметить, что пороговое значение остается примерно таким же и меняется только вид зависимости глубины кратера от энергоклада. На рис. 1 систематизированы полученные результаты.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе предложен подход, позволяющий в рамках одного расчета исследовать различные механизмы лазерной абляции. Получены следующие результаты:

1. Показано, что “короткая” абляция приводит к формированию кратеров на поверхности металла с глубиной порядка десяти нанометров. Данный механизм абляции связан с формированием области отрицательного давления вследствие суммарного действия двух релаксационных процессов: механического расширения и уменьшения T_e .

2. Для субпикосекундных лазерных импульсов “короткая” абляция проявляется явно и данный тип абляции можно отделить от “длинной” абляции, возникающей при более высоких энергокладах.

3. Для пикосекундных лазерных импульсов разделить эти механизмы абляции затруднительно, однако разрушение металла при низких энергокладах также

связано с релаксацией электронного давления в приповерхностном слое.

Подобное исследование стало возможно благодаря использованию ЕТД-потенциала, который учитывает изменение физических свойств ионной подсистемы при нагреве электронной.

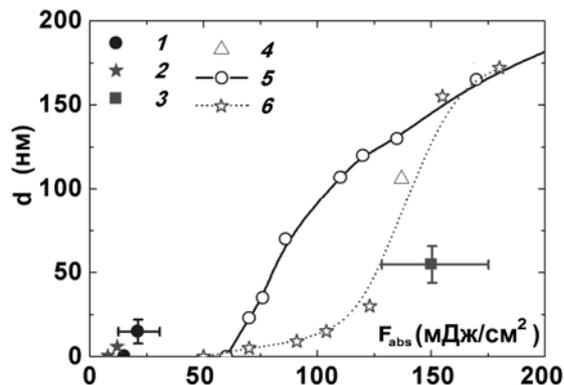


Рис. 1. Зависимость глубины кратера от энерговклада при лазерной абляции золота. Экспериментальные данные: 1 – для рентгеновского импульса с длительностью 7 пс [7]; 2 – для оптического импульса с длительностью 0.08 пс [8]; 3 – для оптического импульса с длительностью 0.1 пс [9]. Результаты расчета: 4 – молекулярно-динамический расчет без учета электронного давления из работы [5]; 5 и 6 – результаты данного исследования для импульсов длительностью 7 пс (глубина поглощения 18 нм – мягкий рентген) и 0.1 пс (глубина поглощения 6 нм – оптический импульс)

Авторы выражают благодарность А.Я. Фаенову за предоставленные экспериментальные данные по абляции золота, а так же Н.А. Иногамову, И.Ю. Скобелеву и А.Ю. Куксину за полезные обсуждения. Расчеты проведены на кластерах МСЦ РАН, “Ломоносов” и МФТИ-60. Работа выполнена при финансовой поддержке Программы фундаментальных исследований президиума РАН “Теплофизика и механика экстремальных энергетических воздействий и физика сильно сжатого вещества” (раздел 1) и гранта РФФИ 10-08-00824.

СПИСОК ОБОЗНАЧЕНИЙ

ЕТД-потенциал — межчастичный потенциал, зависящий от электронной температуры;

T_e — электронная температура;

T_i — ионная температура;

m — масса иона;

v — скорость иона;

F — сила, действующая на ион;

P_e — давление делокализованной энергии электронов;

n_i — концентрация ионов;

F_{abs} — поглощенный поток энергии;

d — глубина кратера;

x, y, z — орты системы координат

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Vorobyev A.Y., Guo C. Femtosecond laser nanostructuring of metals // *Optics Express*. V. 14. 2006. pp. 2164 – 2169.
2. Булгакова Н.М., Стоян Р., Розенфельд А. Лазерно-индуцированная модификация прозрачных кристаллов и стекол // *Квант. Электр.* Т. 40. 2010. С. 966 – 985.

3. Ivanov D., Zhigilei L. Combined atomistic-continuum modeling of short-pulse laser melting and disintegration of metal films // *Phys. Rev. B*. V. 68. 2003. pp. 064114 (22).
4. Lin Z., Zhigilei L., Celli V. Electron-phonon coupling and electron heat capacity of metals under conditions of strong electron-phonon nonequilibrium // *Phys. Rev. B*. V. 77. 2008. pp. 075133 (17).
5. Demaske B., Zhakhovsky V., Inogamov N., Oleynik I. Ablation and spallation of gold films irradiated by ultrashort laser pulses // *Phys. Rev. B*. V. 82. 2010. pp. 064113 (5).
6. Gan Y., Chen J.K. Integrated continuum-atomistic modeling of nonthermal ablation of gold nanofilms by femtosecond lasers // *App. Phys. Lett.* V. 94. 2009. pp. 201116 (3).
7. Стариков С.В., Стегайлов В.В., Норман Г.Э., Фортвов В.Е., Ишино М., Танака М., Хасегава Н., Нишикино М., Охба Т., Каихори Т., Очи Е., Имазоно Т., Кавачи Т., Тамотсу С., Пикуз Т.А., Скобелев И.Ю., Фаенов А.Я. Лазерная абляция золота: эксперимент и атомистическое моделирование // *Письма в ЖЭТФ*, Т. 93. 2011. С. 719 – 725.
8. Vorobyev A., Guo C. Enhanced absorptance of gold following multipulse femtosecond laser ablation // *Phys. Rev. B*. V. 72. 2005. pp. 195422 (5).
9. Иногамов Н.А., Жаховский В.В., Ашитков С.И., Петров Ю.В., Агранат М.Б., Анисимов С.И., Нишихара К., Фортвов В.Е. О нанотопке после воздействия ультракороткого лазерного импульса // *ЖЭТФ*. Т.134. 2008. С. 5-28.