

ОБРАЗОВАНИЕ ПЕРИОДИЧЕСКИХ ПОВЕРХНОСТНЫХ СТРУКТУР ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ СВЕРХКОРОТКИХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ

М. Б. Агранат*, С. И. Анисимов^а, С. И. Ашитков, А. М. Дыхне^б,
П. С. Кондратенко^с, В. Е. Фортос

*Научно-исследовательский центр теплофизики импульсных воздействий
объединенного института высоких температур Российской академии наук
127412, Москва, Россия*

^а *Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау Российской академии наук,
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

^б *Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований
142092, Троицк, Московская обл., Россия*

^с *Институт проблем безопасного развития атомной энергетики Российской академии наук
113191, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 19 июня 1998 г.

Экспериментально обнаружено и теоретически объяснено явление образования периодических поверхностных структур под действием сверхкоротких лазерных импульсов. Эксперименты проводились на графите с пикосекундными лазерными импульсами. Пространственный период структур имеет порядок длины волны падающего излучения, а их ориентация коррелирует с направлением поляризации света. Ключевым моментом предложенной теоретической модели является резонансное возбуждение поверхностных электромагнитных волн, которое в условиях отрыва температуры электронной подсистемы от температуры кристаллической решетки в силу зависимости поверхностного импеданса от температуры приводит за время действия лазерного импульса к записи «температурной решетки» на плоской твердой поверхности образца. Формирование периодического поверхностного профиля из температурной решетки происходит за счет объемного расширения расплавленного приповерхностного слоя вещества. При типичных для металлов значениях поверхностного натяжения и вязкости периодический профиль не успевает рассосаться до затвердевания жидкого слоя. Образование периодических поверхностных структур происходит с временной задержкой относительно лазерного импульса.

1. ВВЕДЕНИЕ

Образование периодических поверхностных структур, отвечающих пространственно-модулированному профилю поверхности с периодом порядка длины световой волны, представляет собой одно из самых распространенных явлений, происходящих при воздействии лазерного излучения на конденсированные среды [1]. В основе механизма этого явления при воздействии на металлы и полупроводники лежат процессы резонансного возбуждения поверхностных электромагнитных волн [2], интерференция которых с падающей волной приводит к пространственной модуляции энерговыделения,

* E-mail: agranat@tiv.phys.msu.su

что посредством подходящего теплофизического механизма (например, испарения или теплового расширения) при наличии положительной обратной связи приводит к образованию периодического поверхностного профиля.

Все известные авторам из проводившихся до сих пор исследований, посвященных периодическим поверхностным структурам, относятся к воздействию лазерными импульсами сравнительно большой длительности, когда физические процессы, сопровождающие развитие данного явления, можно считать квазистационарными. Между тем переход к области сверхкоротких лазерных воздействий (пикосекундной и более короткой длительности) может привести не только к нарушению предположения о квазистационарности, но даже к потере возможности осуществления ряда из указанных процессов за время длительности лазерного импульса. В таких условиях формирование периодических поверхностных структур, если оно имеет место, должно происходить после окончания лазерного воздействия, что составляет принципиальное отличие режима сверхкоротких лазерных импульсов от обычного случая. Наряду с этим имеются и другие существенные особенности режима сверхкоротких лазерных воздействий. Среди них — отрыв температуры электронов проводимости от температуры кристаллической решетки [3] и малость глубины модулированного прогрева. Все это, на наш взгляд, дает основание считать, что само по себе обнаружение явления образования периодических поверхностных структур в данных условиях может иметь исключительное важное значение для понимания физики взаимодействия сверхкоротких лазерных импульсов с конденсированными средами.

В настоящей работе представлены экспериментальные данные, подтверждающие образование периодических поверхностных структур на графите при воздействии пикосекундными лазерными импульсами, и предложена теория образования таких структур при воздействии сверхкороткими лазерными импульсами.

Статья построена следующим образом. В первом разделе изложены результаты экспериментального исследования образования периодических поверхностных структур на графите. Во втором разделе дан теоретический анализ физических процессов, результатом которых является образование таких структур при сверхкоротком лазерном воздействии на металлы. Отдельно рассмотрены процессы поглощения лазерного излучения, неустойчивости по отношению к образованию пространственно-модулированного поля температур за время действия импульса и формирования периодического профиля после окончания лазерного импульса. В третьем разделе обсуждаются результаты.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Периодическая поверхностная структура была обнаружена на поверхности микрокристаллического пирографита при воздействии на поверхность образца лазерными импульсами длительностью ~ 1 пс. Образец графита был изготовлен в форме таблетки (рис. 1), плоская поверхность которой перпендикулярна оси симметрии C . Соответственно торец таблетки параллелен оси симметрии.

Исследование исходного образца методами просвечивающей электронной микроскопии, рентгеновской дифрактометрии и спектроскопии комбинационного рассеяния (см. ниже рис. 2, 3) показало, что исходный образец представляет собой микрокристаллический графит с размерами зерен 10–30 нм. Дифракционная картина для поверхности образца напоминает картину дифракции в случае, когда кристаллиты имеют выделенную преимущественную ориентацию. Слои графита расположены параллельно

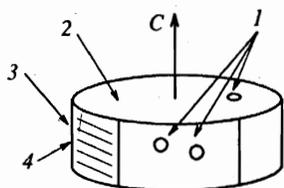


Рис. 1. Расположение пятен фокусировки (1) нагревающего импульса на образце графита: 2 — поверхность образца; 3 — торец образца; 4 — слои графита

друг другу, но расстояние между ними не фиксировано. Наблюдается явно выраженная текстура, т. е. микрокристаллы слегка разориентированы по отношению друг к другу. По результатам этих исследований можно сделать вывод о сильной анизотропии свойств данного образца (в частности, теплопроводности).

Экспериментальные исследования проводились с помощью лазерного комплекса, основанного на многокаскадной ВРМБ- и ВКР-компрессии исходного наносекундного импульса Nd : YAG-лазера, генерировавшего одновременно несколько импульсов различной длительности в фемто- и пикосекундном временных диапазонах с частотой повторения до 10 Гц. Контроль параметров осуществлялся с помощью измерительной системы комплекса, включающей фотодатчики энергии импульсов, электронно-оптическую камеру с временным разрешением ~ 3 пс, автокоррелятор с разрешением ~ 50 фс. Все измерения, в том числе и диагностические, поступали на многоканальный цифровой блок считывания и обработки информации, состоящий из нескольких высокочувствительных цифровых видеокамер и входов аналоговых сигналов, блока синхронизации считывания информации, блока управления лазерной установкой и компьютера, позволяющего управлять установкой по заданной программе, снимать и обрабатывать одновременно информацию с выхода электронно-оптической камеры, осциллографа, автокоррелятора, датчиков энергии, фотодатчиков, спектральных приборов.

Нагревающий лазерный импульс длительностью $\simeq 1$ пс и длиной волны 780 нм фокусировался в пятно диаметром $\simeq 200$ мкм на торец и поверхность графита под углом, близким к нормальному падению (рис. 1). Плотность энергии в пятне фокусировки составляла $\simeq 0.5$ Дж/см². При многократном воздействии лазерными импульсами с частотой повторения 10 Гц в центре пятна фокусировки на торце возникает сильноотражающая (отражение в три-четыре раза больше начального) микрообласть, увеличивающаяся до размера пятна фокусировки. В плоскости поверхности образца отражение увеличивается слабо. На рис. 2а приведено изображение области нагрева на торце при воздействии примерно 150-и лазерных импульсов, полученное с помощью видеокамеры. Электронная микроскопия показала, что во всех пятнах имеет место периодический поверхностный рельеф с периодом $\simeq 0.6$ мкм на торцевых пятнах (рис. 2в), и с периодом $\simeq 1$ мкм в пятне на поверхности образца. На поверхности образца структура менее четкая, чем на торце.

Результаты раман-спектроскопии (рис. 3) показали, что для кратера, расположенного на поверхности образца наличие аморфной фазы углерода идентифицируется как в центре кратера, так и на его периферийной части. При этом доля аморфной фазы больше в центре кратера. Одновременно с аморфной фазой в этих же точках наблюдаются рефлексы, соответствующие микрокристаллической фазе графита. В то же время в пятнах, расположенных на торце образца, рамановские измерения дают присутствие только фазы аморфного углерода без каких-либо следов микрокристаллического графита.

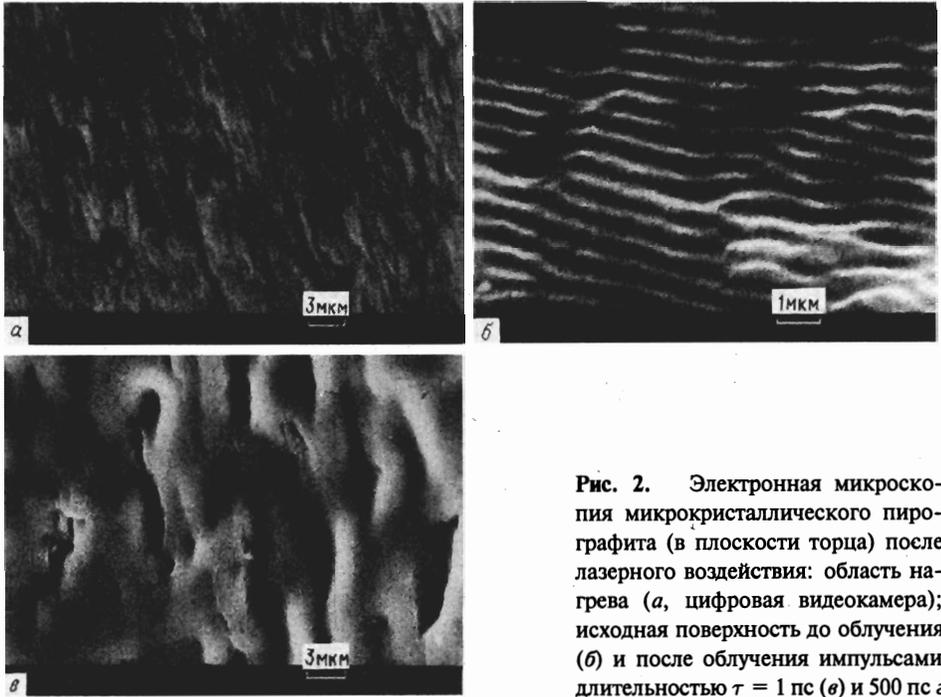


Рис. 2. Электронная микроскопия микрокристаллического пирографита (в плоскости торца) после лазерного воздействия: область нагрева (а, цифровая видеокамера); исходная поверхность до облучения (б) и после облучения импульсами длительностью $\tau = 1$ пс (в) и 500 пс (г)

Были проведены следующие исследования (во всех опытах нагревался торец исследуемого образца микрокристаллического графита).

1. При изменении плоскости поляризации нагревающего импульса (поворот на 45°) ориентация штрихов периодической поверхностной структуры также изменилась на величину $\varphi \approx 45^\circ$.

2. При увеличении длительности нагревающего лазерного импульса до величины $\tau \approx 500$ пс (длина волны 530 нм) образование периодических поверхностных структур не наблюдалось (рис. 2г). Рамановские спектры (рис. 3б, кривая 4) показывают наличие микрокристаллической структуры со следами аморфной фазы.

3. При нагреве исследуемого образца лазерными импульсами длительностью $\tau \approx \approx 1$ пс в неглубоком вакууме (10^{-6} бар) также наблюдалось образование периодических поверхностных структур и аморфной фазы графита (рис. 3б, кривая 5).

4. Подобные исследования были проведены на другом виде графита — монокристалле пирографита. Раман-спектроскопия этого образца обнаруживает монокристаллическую структуру при исследовании поверхности и микрокристаллическую структуру при исследовании торца (рис. 3в). После многократного воздействия лазерными им-

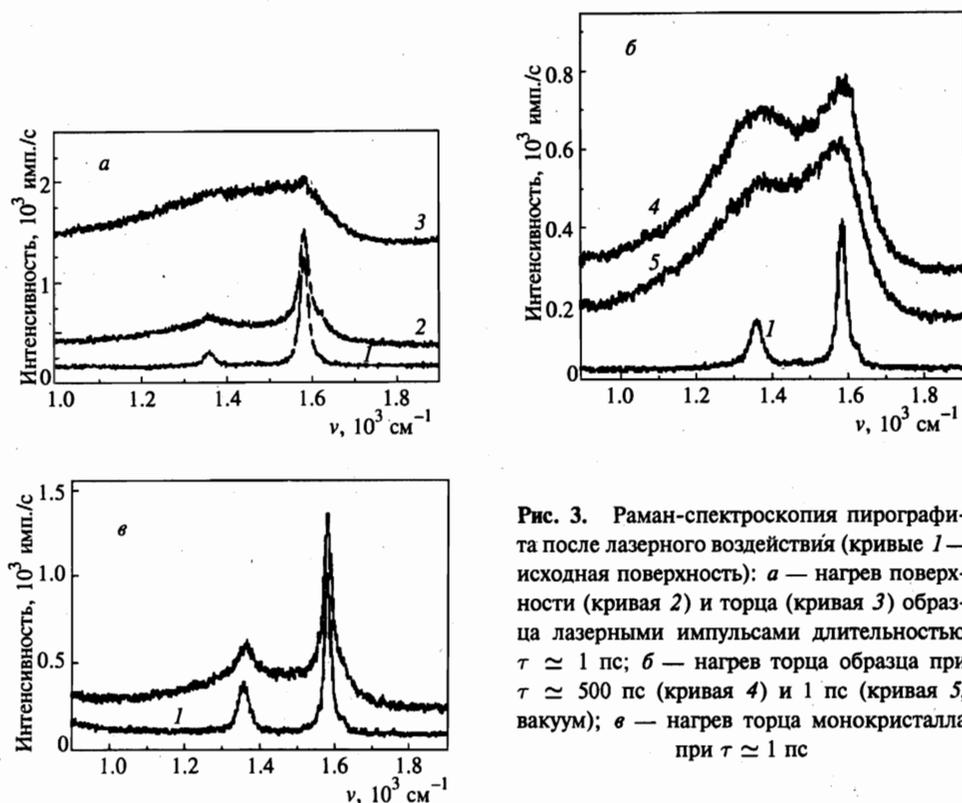


Рис. 3. Раман-спектроскопия пирографита после лазерного воздействия (кривые 1 — исходная поверхность): а — нагрев поверхности (кривая 2) и торца (кривая 3) образца лазерными импульсами длительностью $\tau \approx 1$ пс; б — нагрев торца образца при $\tau \approx 500$ пс (кривая 4) и 1 пс (кривая 5, вакуум); в — нагрев торца монокристалла при $\tau \approx 1$ пс

пульсами ($\tau \approx 1$ пс) образование периодических поверхностных структур не наблюдается. Рамановские спектры показывают наличие микрокристаллической структуры со следами аморфной фазы.

5. При возникновении периодических поверхностных структур на образцах микрокристаллического графита наблюдается эффект накопления, т. е. если при соответствующей плотности энергии нагревающего импульса при однократном воздействии периодическая структура наблюдается в центре пятна фокусировки, то при многократном воздействии импульсами с примерно равными параметрами наблюдается увеличение области образования такой структуры до заполнения всей площади пятна фокусировки (распределение энергии в пятне фокусировки близко к гауссовому).

3. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

3.1. Постановка задачи

Характерная особенность процессов воздействия пикосекундных (и более коротких) лазерных импульсов с умеренными величинами плотности энергии ($\leq 1-5$ Дж/см²) на сильно поглощающие конденсированные среды состоит в том, что за время длительности τ лазерного импульса происходит поглощение энергии излучения и ее перераспределение между подсистемами вещества (электронами проводимости и решеткой), в то время как остальные процессы, такие как тепловое расширение, испарение, а возмож-

но, и плавление [4], требуют более длительного времени и идут после окончания лазерного импульса. Так, упругая разгрузка прогретого слоя вещества толщиной $\delta \sim 10^{-5}$ см, результатом которой является тепловое расширение, происходит за время $\sim \delta/s \simeq 3-10$ пс (s — скорость звука), заметно превышающее длительность τ лазерного импульса. Отсюда следует, что образованию периодической поверхностной структуры должен предшествовать этап формирования пространственно-модулированного поля температуры (запись температурной решетки) за счет неустойчивого процесса с положительной обратной связью¹⁾ за время $t \leq \tau$. Существенной характеристикой этого процесса является то, что при воздействии пикосекундными и более короткими импульсами он идет со значительным отрывом электронной температуры от температуры кристаллической решетки.

В основе процесса формирования периодического профиля температур при воздействии на высокопроводящие материалы должно быть резонансное возбуждение поверхностных электромагнитных волн при дифракции падающей лазерной волны на плоской поверхности с пространственной модуляцией оптических свойств, вызванной периодической модуляцией температуры. Существенно при этом, что глубина модуляции может быть как больше, так и порядка глубины скин-слоя.

В том случае, когда формирование периодических поверхностных структур при $t > \tau$ происходит за счет теплового расширения расплавленного слоя вещества — выдавливания решетки (второй этап), вслед за ним (в качестве третьего этапа) идет обратный процесс — рассасывание решетки вследствие поверхностного натяжения. Фиксация периодического поверхностного профиля в итоге зависит от того, сохранится ли пространственная модуляция температуры поверхности, до того как расплавленный поверхностный слой вещества успеет затвердеть, и сможет ли вязкость расплава оказаться достаточно эффективной, чтобы до затвердевания воспрепятствовать рассасыванию периодического профиля за счет поверхностного натяжения.

Подробное рассмотрение перечисленных выше элементов формирования периодических поверхностных структур при воздействии сверхкоротких лазерных импульсов составляет содержание анализа этого раздела.

3.2. Резонансная дифракция на плоской поверхности с периодической модуляцией оптических свойств

При решении этой задачи удобно воспользоваться импедансным граничным условием в форме Леонтовича [6]:

$$E_t = \tilde{\zeta}[\mathbf{nH}], \quad (1)$$

где E_t — касательная к поверхности часть вектора напряженности электрического поля, \mathbf{H} — вектор магнитного поля, \mathbf{n} — единичный вектор нормали, направленный в глубь образца,

$$\tilde{\zeta} = \zeta + \delta\zeta \quad (2)$$

¹⁾ Отметим, что неустойчивость периодической поверхностной структуры, связанная с пространственной модуляцией температуры при воздействии относительно длинными лазерными импульсами и, таким образом, принципиально отличающаяся от рассматриваемой в настоящей работе, исследовалась в [5].

— эффективный поверхностный импеданс, состоящий из однородной (усредненной по поверхности) части ζ и пространственно-модулированной части $\delta\zeta$, причем $|\delta\zeta| \ll |\zeta|$. Будем далее считать, что глубина однородного в плоскости поверхности нагрева превосходит глубину скин-слоя. В этом случае ζ является равновесной функцией усредненной по поверхности температуры T_i кристаллической решетки. В предположении, что температура T_e нагрева электронов проводимости мала в сравнении с температурой Ферми и температурами, отвечающими межзонным переходам, зависимость ζ от T_e отсутствует. Здесь и далее рассматриваемый металл считаем немагнитным.

Для нахождения малой пространственно-модулированной добавки $\delta\zeta$ к поверхностному импедансу поступим так же, как это делается при выводе импедансного граничного условия в обычном случае [6]: с помощью уравнений Максвелла в среде выразим друг через друга касательные компоненты электрического и магнитного полей на границе. Сравнивая полученное таким способом соотношение с выражениями (1) и (2), находим

$$\delta\zeta = \frac{\partial\zeta}{\partial T_i} \langle \delta T_i \rangle, \quad \langle \delta T_i \rangle \equiv \bar{\mu} \int_0^{\infty} dz \delta T_i \exp(-\bar{\mu}z), \quad (3)$$

где $\bar{\mu} = -2i(\omega/c)(1/\zeta)$, ω и c — соответственно циклическая частота и скорость света. Подчеркнем, что в столь простой форме граничное условие (1) для неоднородного по глубине модулированного по поверхности прогрева металла справедливо в первом приближении по δT_i .

Отметим, что пространственно-модулированные части поверхностного импеданса и температур зависят от координат в плоскости границы следующим образом:

$$\delta\zeta, \delta T_i, \delta T_e \propto \exp(i\mathbf{g}\mathbf{r}), \quad (4)$$

где \mathbf{g} — вектор периодичности поверхностной структуры, удовлетворяющий условию резонанса относительно поверхностной электромагнитной волны:

$$|\mathbf{k}_t + \mathbf{g}| \simeq \omega/c, \quad (5)$$

\mathbf{k}_t — проекция волнового вектора падающей волны на плоскость границы образца, $|\mathbf{k}_t| = (\omega/c) \sin \theta$, θ — угол падения.

Решение задачи о дифракции плоской волны на плоской поверхности с пространственно-модулированными оптическими свойствами, определяемыми соотношениями (2)–(5), на базе граничного условия (1) подобно аналогичной задаче в [7] приводит к выражениям для векторов электрического и магнитного полей поверхностной волны, использование которых дает следующее соотношение для интерференционной пространственно-модулированной части плотности мощности поглощения лазерного излучения:

$$\delta Q(z) = -\mu(1-R)IAB \cos \vartheta \exp(-\mu z + i\vartheta) \frac{\langle \delta T_i \rangle}{T_i}, \quad (6)$$

$$B = \frac{T_i}{\zeta'} \frac{\partial\zeta}{\partial T_i}, \quad \zeta' = \text{Re} \zeta.$$

Здесь R — коэффициент отражения, отвечающий температуре решетки T_i , I — интенсивность падающего излучения, $\mu = 2(\omega/c) \operatorname{Im}(1/\zeta)$,

$$A = \frac{|E_p \cos \psi + E_s \cos \theta \sin \psi|^2}{|E_p|^2 + |E_s|^2 \cos^2 \theta}, \quad (7)$$

E_p, E_s — составляющие амплитуды поля падающей волны соответственно в плоскости падения и перпендикулярно ей, ψ — угол между векторами $\mathbf{k}_t + \mathbf{g}$ и \mathbf{k}_t ; ϑ — угол, определяемый расстройкой резонанса падающей лазерной волны относительно поверхностной волны и меняющийся в пределах

$$\frac{\pi}{2} < \vartheta \leq \pi + \operatorname{arctg} \frac{|\zeta''|}{\zeta'}, \quad \zeta'' = \operatorname{Im} \zeta. \quad (8)$$

Отметим, что выражение (6) для пространственно-модулированной части плотности мощности поглощения отвечает резонансной дифракции с возбуждением одной поверхностной волны с волновым вектором $\mathbf{k}_t + \mathbf{g}$. Специального рассмотрения требует ситуация, соответствующая значениям угла $\psi = \pm(\pi/2 - \theta)$, когда попадают в резонанс и возбуждаются одновременно две поверхностные электромагнитные волны с волновыми векторами $\mathbf{k}_t + \mathbf{g}$ и $\mathbf{k}_t - \mathbf{g}$. В этом случае выражение (6) для δQ модифицируется путем прибавления к нему дополнительного слагаемого, получающегося из первоначального комплексным сопряжением и заменой $\mathbf{g} \rightarrow -\mathbf{g}$, $\psi \rightarrow -\psi$.

3.3. Формирование периодического профиля поля температур

Благодаря резонансу относительно поверхностной электромагнитной волны вычисленная в предыдущем подразделе величина периодически модулированного поглощения излучения является резко избирательной в отношении вектора периодичности \mathbf{g} . Поэтому при наличии положительной обратной связи возникает неустойчивость к формированию периодически модулированного поля температур в приповерхностном слое образца. Для рассмотрения этого процесса воспользуемся двухтемпературной моделью, разработанной в [3, 8]. В соответствии с ней система уравнений для пространственно-модулированных частей температур электронов проводимости и кристаллической решетки при условиях $T_e \gg T_i$, $\delta T_e \gg \delta T_i$ имеет вид

$$\begin{aligned} \left(c_e \frac{\partial}{\partial t} + \bar{\alpha} \right) \delta T_e &= \lambda_e \frac{\partial^2}{\partial z^2} \delta T_e + \delta Q, \\ c_i \frac{\partial \delta T_i}{\partial t} &= \alpha \delta T_e. \end{aligned} \quad (9)$$

Здесь c_e и c_i — теплоемкости соответственно электронов проводимости и кристаллической решетки,

$$\bar{\alpha} = \alpha + \lambda_e g^2, \quad (10)$$

α — параметр обмена энергией между электронами проводимости и кристаллической решеткой, λ_e — коэффициент электронной теплопроводности.

Неустойчивое решение системы (9), как обычно, будем искать в форме

$$\delta T_e, \delta T_i \propto \exp(\gamma t), \quad \operatorname{Re} \gamma > 0. \quad (11)$$

В поведении инкремента γ по отношению к интенсивности падающего излучения в зависимости от роли электронной теплопроводности можно выделить два режима. В первом из них, когда длина диффузии тепла в глубь образца для пространственно-модулированного прогрева велика в сравнении с глубиной скин-слоя μ^{-1} (относительно длинные лазерные импульсы), последний член справа в первом из уравнений (9) играет роль поверхностного источника, и тогда с учетом (6) после подстановки (11) в (9) приходим к уравнению для инкремента:

$$\gamma \sqrt{\gamma + \frac{1}{\tau_e}} = \frac{\delta Q(0)}{c_i \langle \delta T_i \rangle} \frac{a}{\sqrt{\tau_e}}, \quad (12)$$

в котором введены следующие обозначения:

$$\tau_e = \frac{c_e}{\bar{\alpha}}, \quad a = \sqrt{\alpha^2 / \lambda_e \bar{\alpha} \mu^2}. \quad (13)$$

В диапазоне видимого и ближнего инфракрасного спектра излучения, когда время релаксации импульса электронов проводимости, τ_m , удовлетворяет неравенству $\omega \tau_m \gg 1$, фигурирующая в выражении (6) для $\delta Q(z)$ величина B (определенная там же) при температурах выше дебаевской, когда $\tau_m \propto T_i^{-1}$ является вещественной, почти не зависит от температуры решетки и близка к единице:

$$B \approx 1. \quad (14)$$

В этих условиях с учетом выражения (6) для источника и условия (8) на его фазу из уравнения (12) следует, что в рассматриваемом режиме при интенсивностях излучения ниже порогового значения, определяемого по порядку величины выражением

$$I_{th} \sim [(1 - R)a\mu\tau_e]^{-1} c_i T_i, \quad (15)$$

нарастающее во времени решение системы уравнений (9) отсутствует и, следовательно, периодическая поверхностная структура не образуется.

В дальнейшем условие $\omega \tau_m \gg 1$ будем считать необязательным. Выражение (14), однако, с точностью до множителя порядка единицы остается справедливым во всей области применимости импедансного приближения, и потому далее для оценок оно будет нами использоваться без ограничения на частоту падающего излучения.

При интенсивностях, заметно превышающих порог, инкремент нарастания температурной решетки в режиме глубокой пространственной модуляции согласно уравнению (12) дается выражением

$$\gamma \simeq \left(\frac{\delta Q(0)}{c_i \langle \delta T_i \rangle} \frac{a}{\sqrt{\tau_e}} \right)^{2/3}. \quad (16)$$

В этом выражении и в последующей аналогичной формуле для инкремента имеются два свободных параметра — входящие в выражение для δQ углы ϑ и ψ (см. соотношения (6)–(8)). Определение этих величин здесь и далее должно проводиться путем максимизации вещественной части инкремента. В частности, таким образом устанавливается волновой вектор периодической пространственной структуры.

Из равенства (16) с учетом сказанного, а также соотношений (6)–(8) следует, что к моменту окончания лазерного импульса в рассматриваемом режиме вещественная часть показателя экспоненты в соотношениях (11), $\Gamma = \tau \operatorname{Re} \gamma$, приближенно равна

$$\Gamma \approx \left(a^2 \bar{Q}^2 \frac{\tau}{\tau_e} \right)^{1/3}, \quad \bar{Q} = \frac{\mu(1-R)I\tau}{c_i T_i}. \quad (17)$$

В соответствии с оговоренной выше ролью теплопроводности условием применимости выражений (16) и (17) для первого режима является неравенство

$$\lambda_e \mu^2 / c_e |\gamma| \gg 1. \quad (18)$$

Рассмотрим теперь второй режим формирования температурной решетки, когда длина диффузии тепла в глубь образца для пространственно-модулированного прогрева мала в сравнении с глубиной скин-слоя:

$$\lambda_e \mu^2 / c_e |\gamma| \ll 1. \quad (19)$$

В этом случае теплопроводностью в системе уравнений (9) можно пренебречь, и для инкремента неустойчивости по отношению к образованию температурной решетки получается выражение

$$\gamma = \sqrt{\frac{\bar{\mu} \alpha}{(\mu + \bar{\mu}) \bar{\alpha}} \frac{\delta Q(0)}{c_i (\delta T_i) \tau_e}}. \quad (20)$$

Отсюда с учетом соотношений (6)–(8) следует, что к моменту окончания лазерного импульса вещественная часть показателя степени в соотношениях (11) в рассматриваемом режиме дается приближенным равенством:

$$\Gamma \approx \sqrt{\bar{Q} \frac{\tau}{\tau_e}}. \quad (21)$$

3.4. Эволюция периодических поверхностных структур на стадии расплавленного приповерхностного слоя

Обсудим процесс эволюции периодических поверхностных структур в случае, когда механизмом их формирования из температурной решетки является тепловое расширение расплавленного приповерхностного слоя вещества. После окончания лазерного импульса, выравнивания электронной и решеточной температур ($T_e = T_i = T$, $\delta T_e = \delta T_i = \delta T$) и образования расплавленного приповерхностного слоя в результате прохождения упругой релаксации, сопровождаемой изотропным тепловым расширением, происходит формирование периодического профиля поверхности с глубиной

$$h = \frac{1}{3} \beta \delta T \Delta, \quad (22)$$

где Δ — эффективная глубина пространственно-модулированного прогрева, β — коэффициент теплового расширения расплава. На этом этапе в игру вступают силы поверхностного натяжения, стремящиеся сделать границу плоской и таким способом рассосать

периодическую структуру. Решение уравнений гидродинамики с учетом поверхностного натяжения и вязкости приводит к зависимости глубины поверхностного профиля от времени в экспоненциальной форме:

$$h(t) = h(0) \exp(-t/t^*). \quad (23)$$

Входящее сюда время релаксации в приближении мелкой воды [9], когда $g\Delta \ll 1$, $g = |g|$, определяется выражением

$$t^* = \frac{3\eta}{\sigma g(g\Delta)^3}, \quad (24)$$

в котором η — динамическая вязкость, σ — поверхностное натяжение.

4. ОБСУЖДЕНИЕ

Характерным, весьма существенным и неизбежным в условиях воздействия сверхкороткими лазерными импульсами предварительным этапом формирования периодических пространственных структур является запись пространственно-модулированного поля температур (температурной решетки). Этот этап, а следовательно, и весь процесс формирования периодических структур в рассматриваемых условиях, как показано в предыдущем разделе, является пороговым. Оценим пороговую интенсивность, определяемую выражением (15). Полагая $\alpha \approx 10^{12}$ Вт/см³·К, $\mu \approx 3 \cdot 10^5$ см⁻¹, $1 - R \approx 0.7$, $\lambda_e \approx 1$ Вт/см·К, $c_i \approx 1.6$ Дж/см³·К, $\tau_e \approx 10^{-13}$ с, $T_i \approx 10^3$ К, из (13) получаем $a \approx 3$ и из (15) находим $I_{th} \approx 2 \cdot 10^{10}$ Вт/см².

Принимая во внимание, что вещественная часть показателя экспоненты в (11) к моменту окончания лазерного импульса должна быть $\Gamma \approx 10$, с учетом принятых выше значений величин μ и λ_e приходим к выводу, что при длительности лазерного импульса $\tau \approx 10^{-12}$ с в проведенном эксперименте осуществляется второй из двух рассмотренных в предыдущем разделе режимов. Учитывая, что поток энергии в эксперименте составлял 0.1–0.5 Дж/см², на основе соотношений (21) и (17) находим, что требуемые значения величины Γ достигаются.

Отметим, что, поскольку согласно (9), (11) $\delta T_i = (\alpha/\gamma c_i)\delta T_e$ и ввиду того что величина порога (15) отвечает условию $|\gamma|\tau_e \sim 1$, при интенсивностях лазерного импульса выше порога имеет место соотношение между периодически модулированными частями температур электронов и решетки

$$|\delta T_i| < \frac{\alpha c_e}{\alpha c_i} |\delta T_e|.$$

Отсюда с учетом неравенства $c_e \ll c_i$ следует, что формирование температурной решетки может происходить лишь в условиях значительного отрыва модулированной части электронной температуры от решетки. Одновременно с этим выполнение в надпороговой области неравенства $|\gamma|\tau_e > 1$ с учетом оценки $|\gamma|\tau \approx 10$ приводит к выводу, что в этих условиях отрыв однородной в плоскости поверхности раздела электронной температуры (хотя и не столь значительный) также должен иметь место.

В ходе интерпретации экспериментальных данных, касающихся последующих этапов формирования периодических поверхностных структур, мы исходим из того, что

после фиксации температурной решетки образование периодического рельефа происходит за счет теплового расширения расплавленного приповерхностного слоя вещества. Косвенным доводом в пользу такого предположения является то, что как периодическая структура, так и аморфный графит [10], в значительно более отчетливом виде образуются на торцевом участке границы образца, чем на его поверхности. Этот факт можно легко понять на основе преобладающей роли приповерхностного расплавленного слоя по сравнению с процессами испарения с последующим осаждением на поверхность, если учесть следующее обстоятельство. В силу слоистой структуры образца теплопроводность по нормали к границе заметно больше на торце, чем на поверхности образца. Это обеспечивает на торце более быстрое охлаждение расплавленного слоя и, соответственно, более благоприятные условия для перехода жидкого слоя в аморфное состояние. То же относится и к формированию периодических поверхностных структур, поскольку, как отмечалось выше, для реализации механизма, основанного на пространственно-модулированном тепловом расширении жидкого слоя, требуются быстрое затвердевание (за счет диффузии тепла в глубь образца) и медленная релаксация пространственно-модулированного температурного поля за счет диффузии тепла в плоскости границы. Проведем сравнение характерных времен соответствующих процессов.

Требуемые для оценки времени релаксации периодического профиля на жидкой поверхности (формула (24)) значения поверхностного натяжения и вязкости для жидкого графита неизвестны. Однако отношение этих двух характеристик для жидких металлов меняется в сравнительно узких пределах. Для совокупности жидких Al, Bi, Pb, Cu и Fe это отношение заключено в пределах $\eta/\sigma = (1-4) \cdot 10^{-5}$ с/см. Считая, что для жидкого графита эта величина не выходит далеко за эти пределы, и полагая $\Delta \approx 2 \cdot 10^{-6}$ см, $g \approx 10^5$ см⁻¹, получаем оценку $t^* > 1$ нс.

Время релаксации пространственно-модулированного температурного профиля за счет диффузии тепла в плоскости границы образца определяется выражением $t_r \approx (\chi g^2)^{-1}$, в котором χ — коэффициент температуропроводности. Полагая $\chi \approx 0.1$ см²/с при $g \approx 10^5$ см⁻¹ имеем $t_r \approx 1$ нс.

Наконец, согласно [4], затвердевание поверхности в рассматриваемом режиме лазерных воздействий происходит за времена порядка $t_s^* \approx 100$ пс.

Сопоставляя времена t^* , t_r и t_s , приходим к выводу, что до затвердевания расплавленного приповерхностного слоя сохраняется пространственная модуляция температуры поверхности, с одной стороны, и, вместе с тем, периодический поверхностный профиль не успевает рассосаться за счет поверхностного натяжения, с другой. Все это дает основание полагать, что предложенный механизм формирования периодических поверхностных структур за счет теплового расширения расплавленного приповерхностного слоя графита соответствует проведенному эксперименту.

Отметим, что при воздействии достаточно продолжительными лазерными импульсами, когда отрыва электронной температуры не происходит, система двух уравнений (9) трансформируется в одно уравнение для модулированной части равновесной температуры $\delta T_e = \delta T_i = \delta T$, решение которого в форме (11) с учетом соотношений (6), (8), (14) соответствует $\text{Re } \gamma < 0$.

В заключение раздела сделаем еще два замечания. Первое состоит в том, что характер и качество образующихся периодических поверхностных мод может в значительной мере зависеть от первоначального состояния поверхности. Так, в работах [11–14] показано, что специально созданная неоднородность поверхности, например в виде прямолинейного штриха, приводит к существенному облегчению образования периодических

поверхностных мод и улучшению их качества. Второе замечание связано с высокими плотностями мощности лазерного излучения, использующимися в наших экспериментах. Как показано в работе [13], при интенсивностях $\sim 10^{12}$ Вт/см² могут оказаться заметными полевые поправки к диэлектрической проницаемости, что может привести к зависимости периода поверхностных структур от плотности мощности лазерного излучения. Оба отмеченных аспекта имеют прямое отношение к физике образования периодических поверхностных мод при воздействии сверхкоротких лазерных импульсов и заслуживают проведения специальных исследований.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные результаты работы состоят в следующем.

Экспериментально зарегистрировано образование светоиндуцированных периодических структур на поверхности графита при воздействии пикосекундных лазерных импульсов. Близость пространственного периода структур к длине волны падающего излучения и корреляция между их ориентацией и поляризацией излучения позволили связать механизм образования таких структур с резонансным возбуждением поверхностных электромагнитных волн.

Предложена теоретическая модель процесса образования периодических поверхностных структур под действием ультракоротких лазерных импульсов. В соответствии с ней этот процесс идет в три этапа. На первом этапе за время действия импульса в условиях отрыва электронной температуры от температуры решетки создается пространственная модуляция вдоль поверхности температуры и давления. На втором этапе происходит упругая разгрузка приповерхностного слоя и благодаря тепловому расширению формируется периодический рельеф поверхности с сохранением ее температурной модуляции. На третьем этапе идут одновременно два процесса: рассасывание периодического рельефа за счет поверхностного натяжения и остывание поверхности с затвердеванием. Периодическая пространственная структура фиксируется в том случае, когда затвердевание происходит быстрее процесса релаксации поверхностного профиля на жидкой поверхности.

Проведенные оценки подтвердили адекватность предложенной модели эксперименту с образованием периодических поверхностных структур на графите под действием пикосекундных лазерных импульсов.

Данная работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 96/52-18494а и 96/52-18495а).

Литература

1. A. E. Siegman and P. M. Fauchet, IEEE J. Quant. Electr. **QE-22**, 1384 (1986).
2. А. М. Бонч-Бруевич, М. К. Коченгина, М. Н. Либенсон, В. С. Макин, С. Д. Пудков, В. В. Турбаев, Изв. АН СССР, серия физ. **46**, 1186 (1982).
3. С. И. Анисимов, Б. Л. Капелиович, Т. Л. Перельман, ЖЭТФ **31**, 232 (1974).
4. М. Б. Агранат, С. И. Анисимов, С. И. Ашитков, А. В. Кириллин, П. С. Кондратенко, А. В. Костановский, В. Е. Фортон, ЖЭТФ **113**, 1184 (1998).

5. А. А. Ковалев, П. С. Кондратенко, Ю. Н. Орлов, Изв. АН СССР, серия физ. 53, 572 (1989).
6. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982).
7. Г. М. Гандельман, П. С. Кондратенко, ЖЭТФ 88, 1470 (1985).
8. S. I. Anisimov and V. Rethfeld, Proc. SPIE 3093, 192 (1997).
9. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Гидродинамика*, Наука, Москва (1986).
10. М. Б. Агранат, С. И. Анисимов, С. И. Ашитков, А. В. Кириллин, П. С. Кондратенко, А. В. Ко-
становский, В. Е. Фортов, Письма в ЖЭТФ 66, 661 (1997).
11. Б. И. Макшанцев, Н. Ф. Пилипецкий, КЭ 12, 860 (1985).
12. Ю. В. Вигант, А. А. Ковалев, О. Л. Куликов, Б. И. Макшанцев, Н. Ф. Пилипецкий, Е. А. Су-
харева, ЖЭТФ 91, 213 (1986).
13. Б. И. Макшанцев, Э. А. Маныкин, ЖЭТФ 93, 437 (1987).
14. Yu. V. Vigant, A. A. Kovalev, O. L. Kulikov, B. I. Makshantsev, and N. F. Pilipetskii, Appl. Phys.
B 44, 61 (1987).