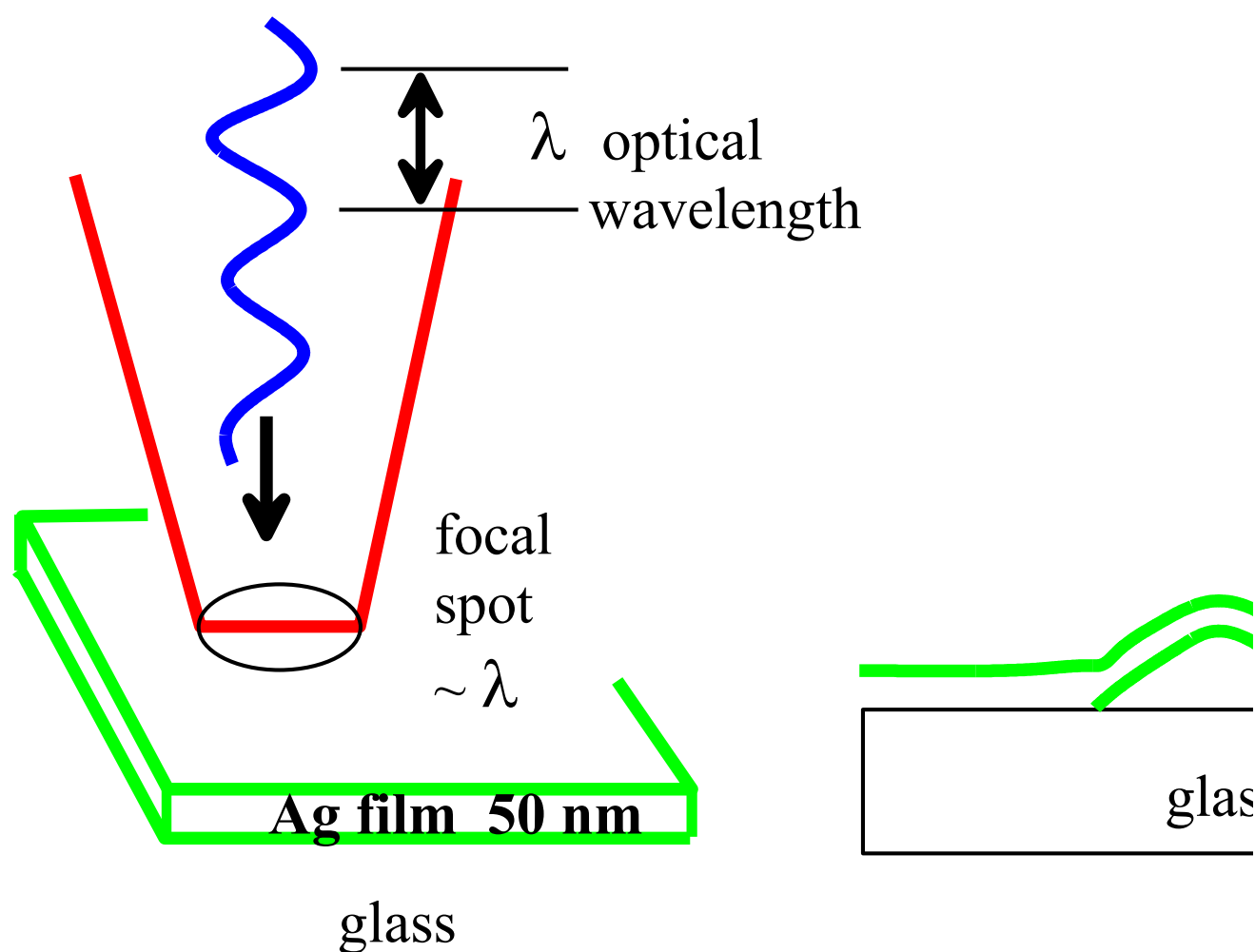


Блистеринг = задача 1

Блистеринг тонких пленок металла на подложке остросфокусированным ультракоротким лазерным импульсом

Пояснения, терминология

Блистеринг = blistering = волдырь, вздутие = laser peeling



Blistering of a film by diffraction limited short laser pulse

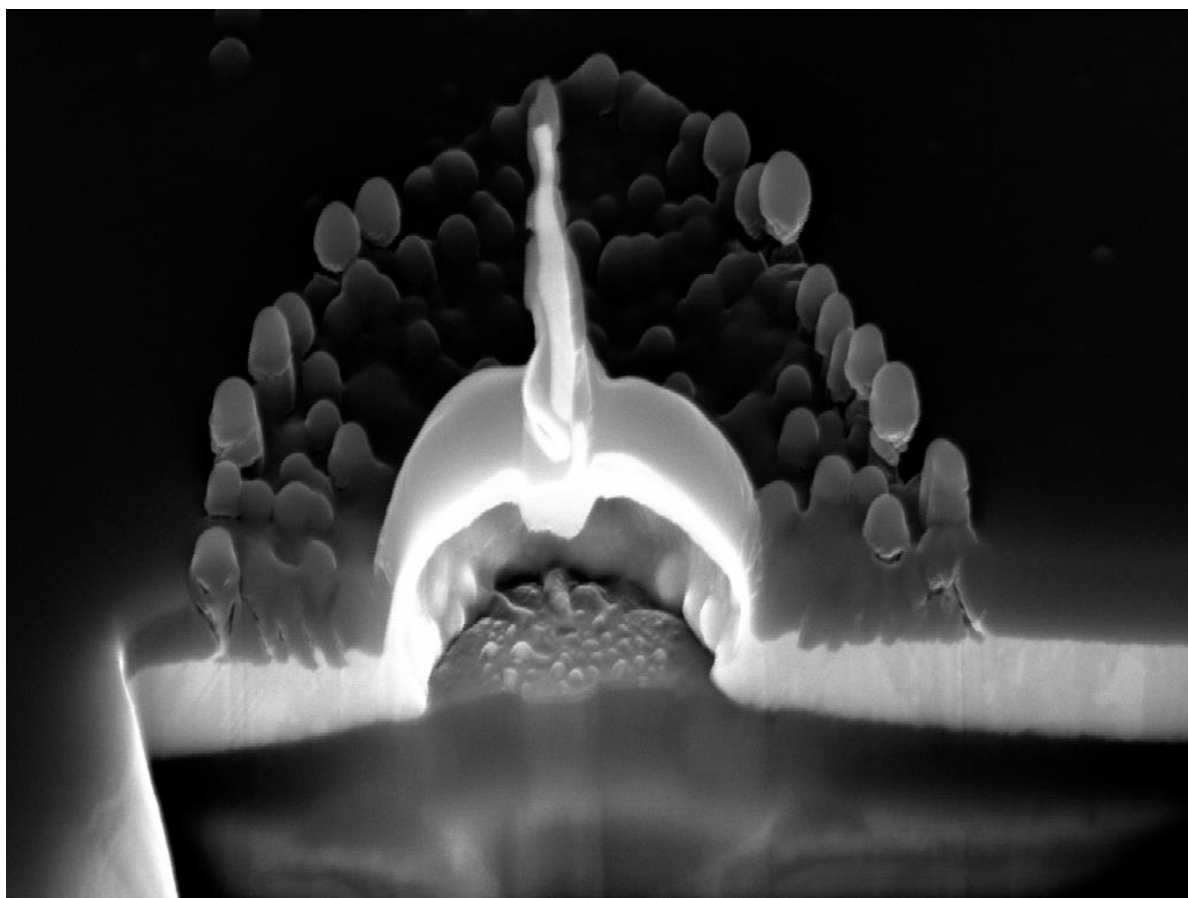


Рис. 1.

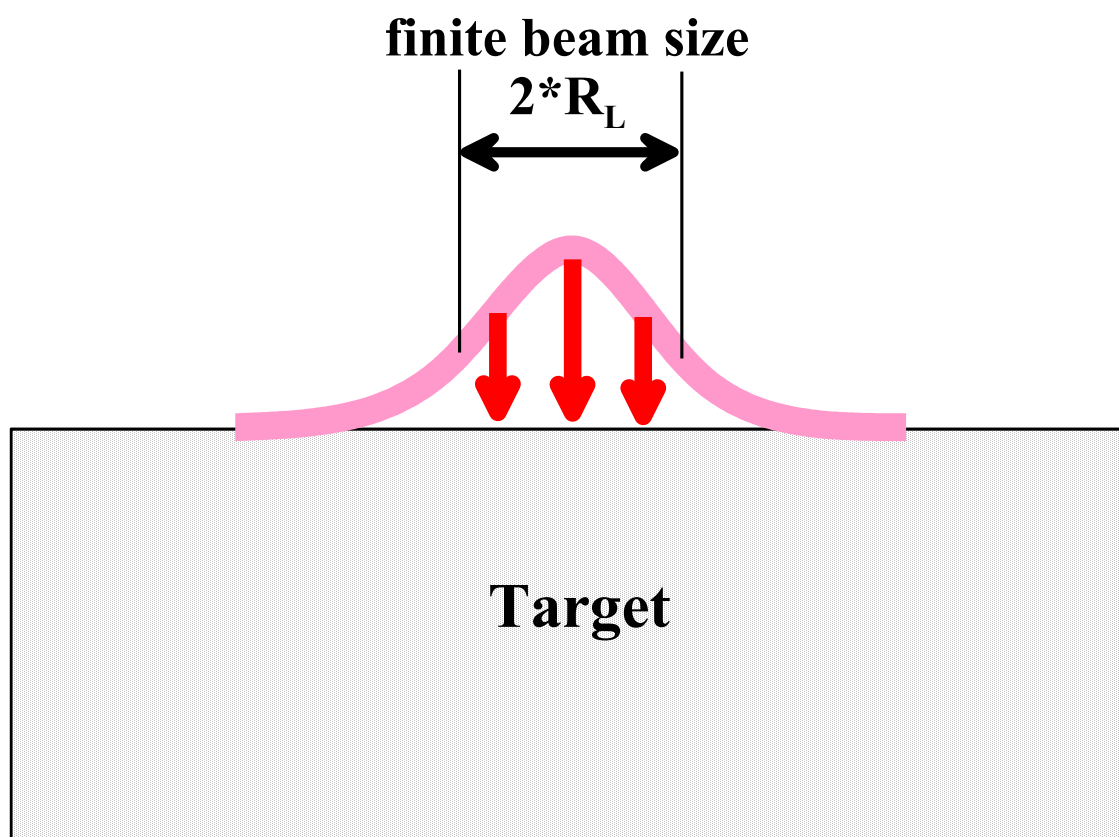


Рис. 2.

Розовая кривая – это тонкая пленка на поверхности подложки. Подложка – суть серый прямоугольник на рис. 2. Пленка и подложка вместе образуют «мишень», target. Target – это облучаемый объект. Под действием лазерного «удара» пленка приобретает скорость, направленную от подложки, и отслаивается от подложки. Отслоение происходит в пятне облучения на поверхности пленки.

Далее в зависимости от скорости, которую имеет пленка после отслоения возможны разные сценарии.

--Если скорость мала, то пленка может полностью вернуться назад под действием возвращающих сил. Обычно пленка еще до отслоения внутри пятна нагрева плавится. Тогда возвращающие силы – это силы поверхностного натяжения. Эти силы красными стрелками показаны на рис. 2. Поверхностное натяжение, разумеется, действует по

касательной. Но из-за кривизны поверхности возникает возвращающая силовая составляющая.

--если скорость побольше, то полного возврата назад на поверхность подложки нет. Время бежит - расплав остывает и кристаллизуется. И образуется вздутие в виде полого купола = блистеринг пленки.

--если скорость еще больше, то пленка отрывается и улетает. На поверхности мишени остается отверстие, через которое видна поверхность подложки.

тонких пленок металла

Критерии тонкости. Критерий 1: Тонкой будем считать пленку, которая прогревается по всей своей толщине df (d-film) за время, которое много меньше ***акустического масштаба*** времени.

Кроме того, имеется вспомогательный критерий тонкости. По умолчанию полагается, что радиус пятна нагрева RL (R-laser, см. рис. 2) велик по сравнению с толщиной пленки: $RL \gg df$. Это стандартная экспериментальная ситуация.

Акустический масштаб

Это время t_s (time sound, sonic), за которое звук пробегает толщину пленки $t_s = df/c_s$, c_s = скорость звука. Например, пленка золота толщиной 50 нм, $t_s = 50\text{nm}/(3.1\text{nm/ps}) = 17\text{ ps}$:
 $\text{nm} = 10^{-9}\text{ m} = 10^{-7}\text{ cm}$, c_s золота $3100\text{ м/с} = 3.1\text{ км/с} = 3.1\text{ mm}/\mu\text{s} = 3.1\text{ }\mu\text{m/ns} = 3.1\text{ nm/ps}$, $\text{ps} = 10^{-12}\text{ s}$ – пикосекунда.

на подложке тонких пленок металла ***на подложке***

это стандартная экспериментальная ситуация. Пленка напыляется, например, магнетроном, на поверхность диэлектрической подложки: препаратное стекло (толщина мм), кварц, сапфир, кремний.

остросфокусированным лазерным импульсом

фокусировка лазерного пучка. Размер пятна на поверхности ограничен дифракционным пределом. Для лазера оптического или ближнего ИК диапазона длина волны порядка микрона. Поэтому минимальный размер пятна на поверхности порядка 1 мкм – острая или предельная фокусировка. Если пятно велико ($\gg$ мкм), то работает геометрическая оптика

ультракоротким лазерным импульсом

для нашей задачи о блистеринге ультракоротким является любой импульс с длительностью воздействия τ_L (laser pulse duration) малой по сравнению с акустическим масштабом t_s . Более правильно сравнивать время прогрева пленки «насквозь» по толщине t_T с акустическим масштабом t_s : $t_T \ll t_s$. Ясно, что $\tau_L < t_T$.

Ситуация в опытах и технологиях («реальность») такова, что применяются фемто- пикосекундные лазеры с τ_L от десятков фс до нескольких единиц пс.

Литература по задаче тут:

1--[Formation of nanojets and nanodroplets by an ultrashort laser pulse at focusing in the diffraction limit](#)

NA Inogamov, VV Zhakhovskii
2014 JETP letters 100, 4-10

- 2--[Jet formation in spallation of metal film from substrate under action of femtosecond laser pulse](#)
NA Inogamov, VV Zhakhovskii, VA Khokhlov
2015 Journal of Experimental and Theoretical Physics 120, 15-48
- 3--[Surface 3D nanostructuring by tightly focused laser pulse: simulations by Lagrangian code and molecular dynamics](#)
NA Inogamov, VV Zhakhovsky
2016 Journal of Physics: Conference Series 681 (1), 012001
- 4--[Blistering of film from substrate after action of femtosecond laser pulse](#)
2016 VV Zhakhovsky, NA Inogamov
- 5--[Laser-induced spalling of thin metal film from silica substrate followed by inflation of microbump](#)
NA Inogamov, VV Zhakhovsky, KP Migdal
2016 Applied Physics A 122, 1-9
- 6--[Blistering of film from substrate after action of ultrashort laser pulse](#)
NA Inogamov, VV Zhakhovsky, VA Khokhlov, AA Kuchmizhak, ...
2016 Journal of Physics: Conference Series 774 (1), 012102
- 7--[Solitary nanostructures produced by ultrashort laser pulse](#)
NA Inogamov, VV Zhakhovsky, VA Khokhlov, YV Petrov, KP Migdal
2016 Nanoscale research letters 11 (1), 1-13
- 8--[Redistribution of a material at femtosecond laser ablation of a thin silver film](#)
PA Danilov, DA Zayarny, AA Ionin, SI Kudryashov, AA Rudenko, ...
2016 JETP letters 104, 759-765
- 9--[Laser printing of resonant plasmonic nanovoids](#)
A Kuchmizhak, O Vitrik, Y Kulchin, D Storozhenko, A Mayor, A Mirochnik, ...
2016 Nanoscale 8 (24), 12352-12361
- 10--[Rarefaction after fast laser heating of a thin metal film on a glass mount](#)
NA Inogamov, VA Khokhov, YV Petrov, VV Zhakhovsky, KP Migdal, ...
2017 AIP Conference Proceedings 1793 (1), 070012
- 11--[Formation and crystallisation of a liquid jet in a film exposed to a tightly focused laser beam](#)
SI Anisimov, VV Zhakhovsky, NA Inogamov, SA Murzov, VA Khokhlov
2017 Quantum Electronics 47 (6), 509
- 12--[Laser-induced translative hydrodynamic mass snapshots: noninvasive characterization and predictive modeling via mapping at nanoscale](#)
XW Wang, AA Kuchmizhak, X Li, S Juodkasis, OB Vitrik, YN Kulchin, ...
2017 Physical Review Applied 8 (4), 044016
- 13--[Laser ablation caused by geometrically constrained illumination and inventive target design](#)
NA Inogamov, VV Zhakhovsky, VA Khokhlov
2018 Journal of Physics: Conference Series 946 (1), 012008
- 14--[Warm dense matter in extremely small volume-Hydrodynamics of nanofilms triggered by laser irradiation at diffraction limit](#)
NA Inogamov, VV Zhakhovsky, VA Khokhlov
2018 AIP Conference Proceedings 1979 (1), 190002
- 15--[Study of damage structure formation on aluminum film targets by picosecond soft X-ray laser ablation around threshold region](#)
M Ishino, NA Inogamov, S Tamotsu, VV Zhakhovsky, N Hasegawa, ...
2018 Applied Physics A 124, 1-8

Приведенные выше статьи дают представление о том, что уже сделано, и для чего это нужно (фундаментальная физика и технологические приложения).

Приложения в качестве метаповерхностей с управляемыми оптическими характеристиками (управление через управление плазмониной) и в качестве высокочувствительных сенсоров (реагирование на мельчайшие концентрации определяемого агента) неплохо описаны в статье 9

Задача заключается в описании динамики развития блистеринга/пилинга во времени в приближении тонкой пленки

Статья 2 – система уравнений, обоснования. Версия на русском языке свободно скачивается: ЖЭТФ, [Том 147, Вып. 1](#), стр. 20 (Январь 2015) DOI: [10.7868/S0044451015010034](#)

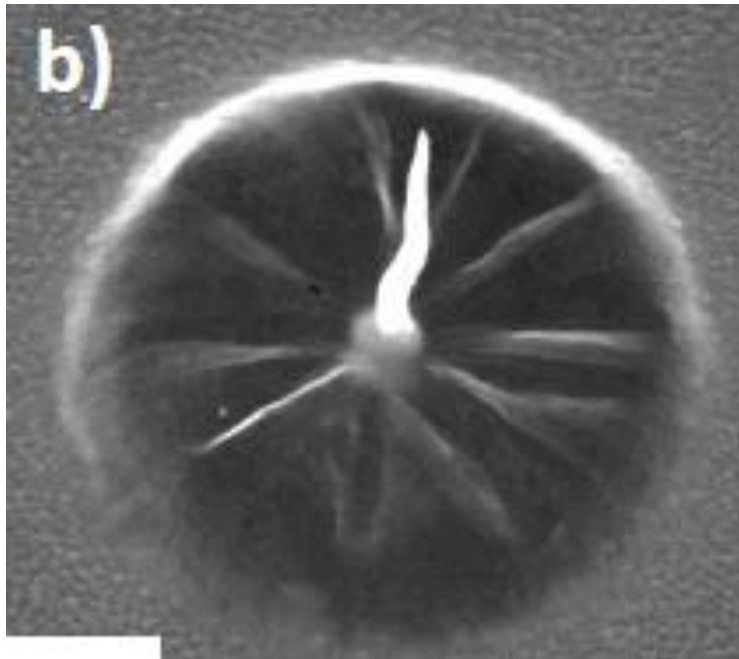
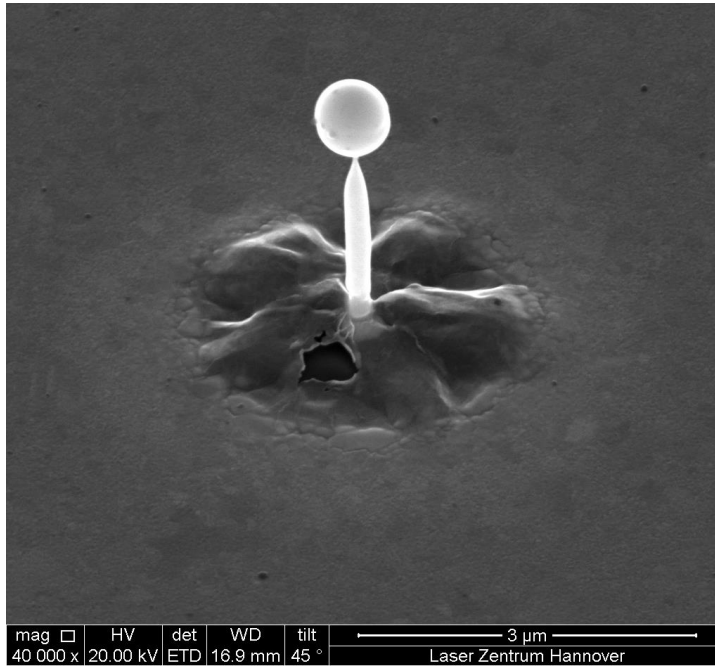
Статья 6 – система уравнений, плюс программа на математике (open access)

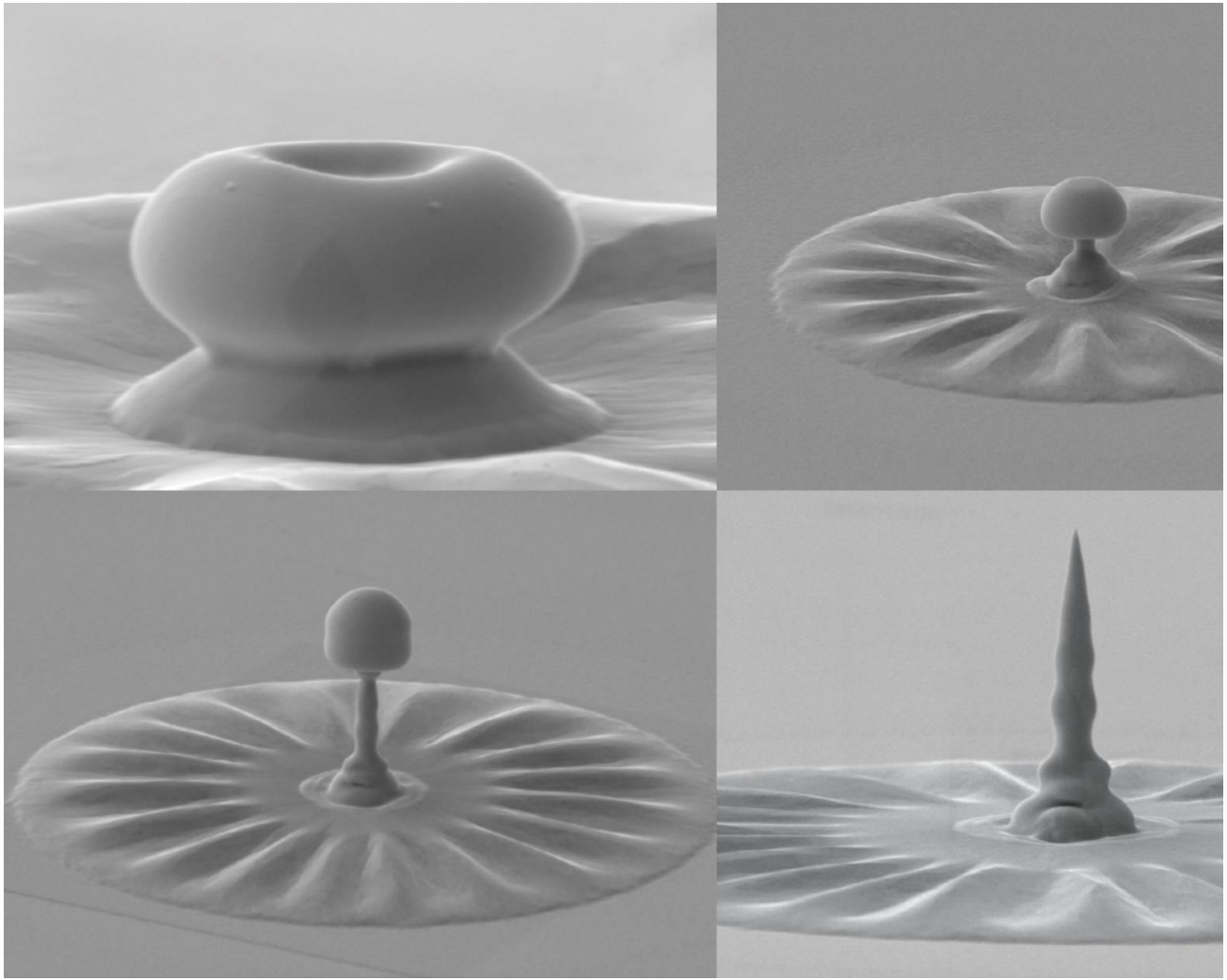
Нужно решить эту систему уравнений на математике для задачи Коши со следующими начальными данными: при $t=0$ пленка находится на подложке с плоской границей и имеет начальное распределение нормальной компоненты скорости по параболе внутри круга с радиусом RL – $v_z = v_0 * (1 - r^2/RL^2)$ при $r < RL$, $v_z = 0$ при $r > RL$. Все другие компоненты скорости равны нулю.

уточнение: нормальная компонента скорости v_z направлена по нормали z к поверхности подложки.

Коллеги, если нужна какая-то публикация из списка выше, напишите, пожалуйста, мне на адрес nailinogamov@gmail.com, я вышлю.

Далекая цель – объяснить гофрировки на куполе вида





Эта фундаментальная задача остается нерешенной. Материал для публикации в высокорейтинговом журнале и, соответственно, существенный вклад в диссертационную работу

ЗАДАЧА 2

Interference: **Diagnostics by means of interference**

Требуется знание формул Френеля. Нужно находить амплитуду и фазу отраженной электромагнитной (ЭМ) волны.

1—Общая картина

Интерференция двух плоских ЭМ волн, см. рисунки 1, 2 и 3. На рис. 1 показаны две плоские р-поляризованные волны с интенсивностями I_1 (красная) и I_2 (синяя). Они падают на плоскость ПЗС. Найдите длину волны модуляции и распределение интенсивности на плоскости ПЗС = прибор с зарядовой связью. Плоскость ПЗС задается уравнением $y=0$. Длины красной и синей ЭМ волн одинаковы. Вне ПЗС они распространяются в вакууме.

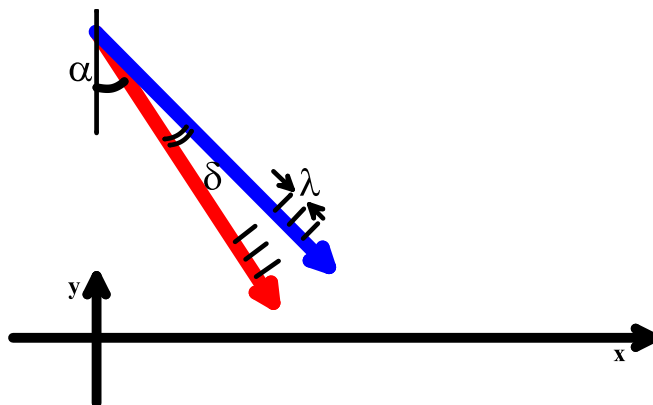


Рис. 1.

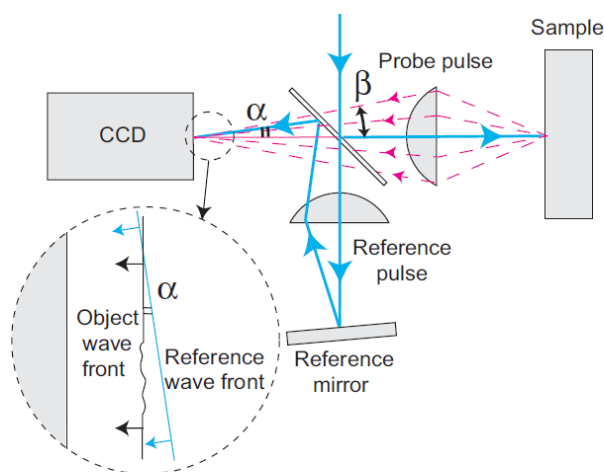


Figure 3: Formation of an interferogram in a Linnik microinterferometer. Рис. 2. Схема

ТИПИЧНОГО ОПЫТА.

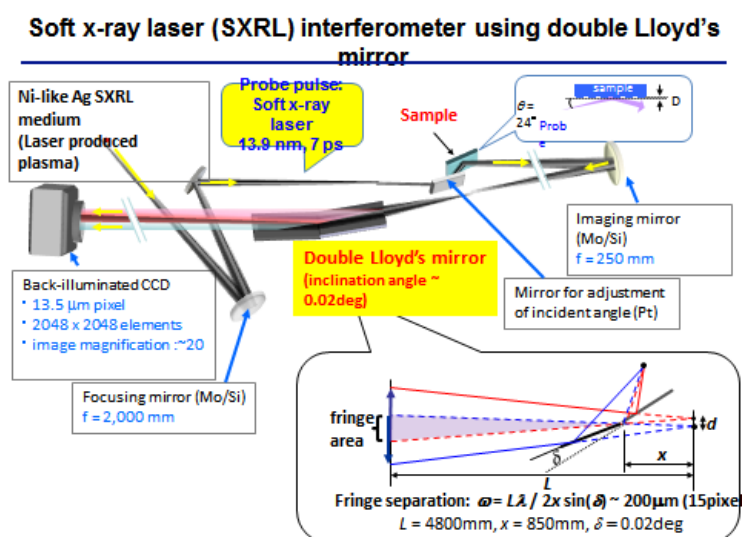


Рис. 3. Рентгеновский

интерферометр.

2—Постройте интерференционную картину в случае, когда мишень (Sample на рис. 2) является полупространством, заполненным золотом. Это простейший случай двух смежных полупространств. Одно из них вакуум, другое – золото. Полупространства разделены плоской границей. Волновой вектор плоской ЭМ волны падает на эту границу под углом тета. Это угол между волновым вектором и проекцией волнового вектора на границу, см. рис. 4. Длина волны 13.9 нм (жесткий ультрафиолет-мягкий рентген).

Для решения задачи найдите показатель преломления золота на длине волны 13.9 нм.

https://henke.lbl.gov/optical_constants/getdb2.html. Index of Refraction или

<https://refractiveindex.info/?shelf=main&book=Au&page=Windt>

3—Постройте интерференционную картину в случае, когда между «толстым» вакуумом и «толстым» золотом имеются еще два слоя конечной толщины. Эта ситуация показана на рис. 4. Пусть для простоты показатели преломления слоя жидкого золота и золота внизу будут одинаковыми.

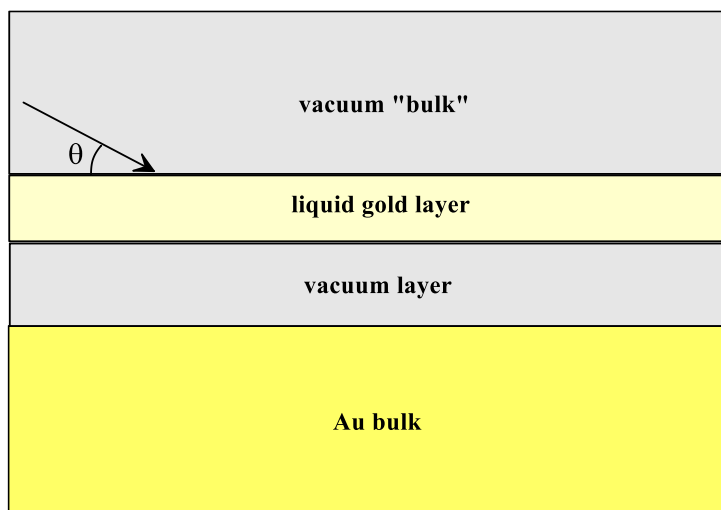


Рис. 4. Угол тета равен

22-м градусам.

Речь идет об интерференции интенсивности ЭМ поля на плоскости ПЗС матрицы. Суммарной ЭМ поле на ПЗС складывается из объектной ЭМ волны и опорной ЭМ волны, см. рис. 2. На рис. 2 объектной ЭМ волны называется object wave, а опорная ЭМ волна – reference wave.

На рис. 4 объектная волна – это та волна, которая получается в результате отражения падающей волны от слоистой структуры.

4—Рассмотрите случай, аналогичный показанному на рис. 4, но с переменной (вдоль границы) толщиной слоя «liquid gold layer», см. рис. 5. Как изменится картина интерференции?

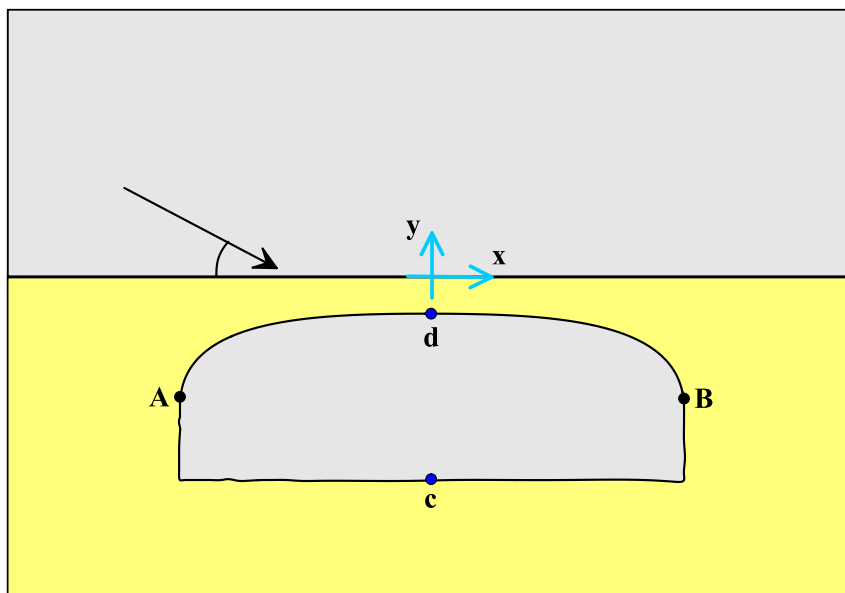


Рис. 5. В

полости сAdB вакуум. Геометрия подповерхностной полости. Расстояние AB = 100 мкм, кривая AdB – парабола $y = -5 - 10 \cdot (x/50)^2$.

Расстояния по вертикальной оси y измеряются в нанометрах (нм), по горизонтальной оси x – в мкм. Координаты точки «с» $x=0$, $y = 20$ нм.

В расчетах на каждом локальном участке по x можно пренебречь кривизной параболы, поскольку масштабы полости по горизонту, во-первых, намного больше размеров по горизонтали и, во-вторых, намного больше длины волны.

5—Прикладное значение задачи.

В эксперименте используют лазеры на мягком рентгене (SXRL – soft X-ray laser) для диагностики (=probe) развития полости. Полость возникает после облучения мишени достаточно мощным фемтосекундным импульсом оптического лазера. На рис. 6 диагностический пучок – это SXRL probe beam. Греющий (pump) импульс титан-сапфирового лазера на рисунке – это TiS pump beam

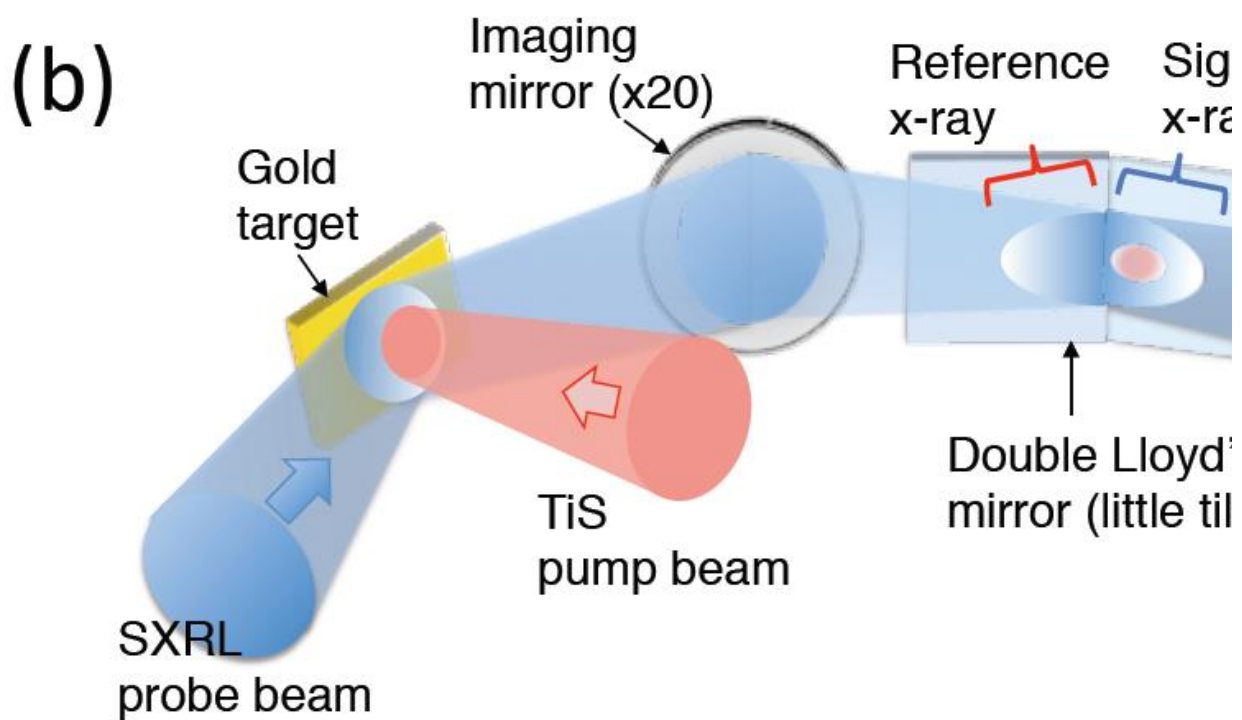
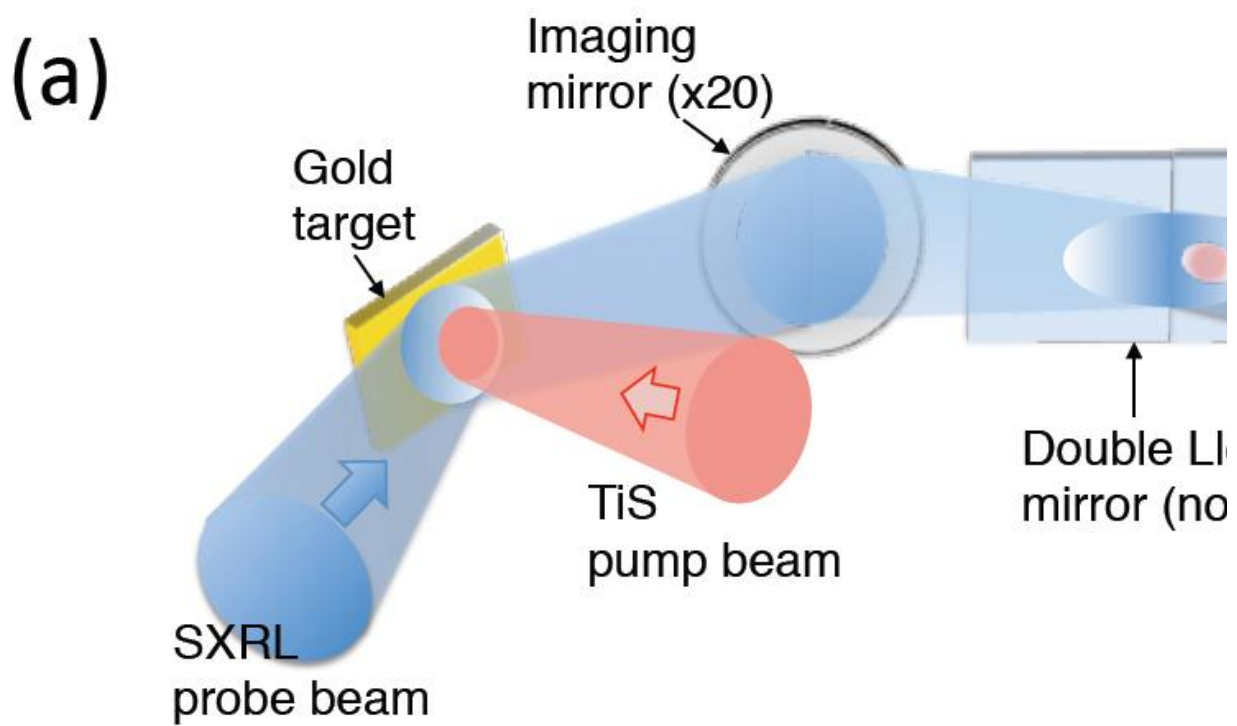


Рис. 6. Этот рисунок рассматривайте вместе с рис. 3.

СТРУЕОБРАЗОВАНИЕ ПРИ ОТРЫВЕ МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ ПЛЕНКИ ОТ ПОДЛОЖКИ В РЕЗУЛЬТАТЕ ВОЗДЕЙСТВИЯ ФЕМТОСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРНОГО ИМПУЛЬСА

Н. А. Иногамов^{a}, В. В. Жаховский^b, В. А. Хохлов^a*

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

^b *Всероссийский НИИ автоматики им. Н. Л. Духова, Росатом
127055, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 20 августа 2014 г.

Хорошо известно, что при абляции ультракоротким лазерным импульсом основной вклад в унос вещества определяется не испарением, а термомеханическим отрывом вещества. При одинаковых металлах и параметрах импульса характер процесса отрыва зависит от толщины пленки d_f . Имеется важный масштаб, равный глубине прогрева металла d_T на двухтемпературной стадии, на которой температура электронов выше температуры ионной подсистемы. Мы сравниваем случаи $d_f < d_T$ (тонкая пленка) и $d_f \gg d_T$ (объемная мишень). Радиус R_L пятна нагрева оптическим лазером является вторым (после d_f) важным геометрическим параметром. Морфология вспучивания пленки в случае $d_f < d_T$ на подложке (блистеринг) меняется при изменении радиуса R_L в диапазоне от дифракционного предела $R_L \sim \lambda$ до больших значений $R_L \gg \lambda$, где $\lambda \sim 1$ мкм — длина волны оптического лазера. В условиях $d_f < d_T$, $R_L \sim \lambda$ и $F_{abs} > F_m$ на пленке золота, нанесенной на стеклянную подложку, появляется куполообразное вспучивание с миниатюрной замороженной наноструйкой, имеющей вид заострения, на округлой вершине купола (F_{abs} и F_m — поглощенная энергия и порог плавления пленки в расчете на единицу поверхности пленки). Предложен новый физический механизм, который приводит к образованию наноструйки.

DOI: 10.7868/S0044451015010034

1. ВВЕДЕНИЕ

Многие важные современные технологии основаны на применении ультракоротких лазерных импульсов (УКЛИ) длительностью $\tau_L \sim 0.01$ –1 пс. Сюда относятся формирование решеток из полых бугорков на поверхности пленки; структурирование пленок для биоприложений и микроэлектроники; усиление статического электрического поля на вершинах миниатюрных струй, которые венчают полые бугорки; перенос микроскопических кусочков пленки с подложки на ресивер (лазерное печатание) и др. Подробные перечни соответствующих ссылок приведены в недавних статьях [1, 2], посвященных изучению блистеринга и наноструй. Начиная с работ [3, 4], известно, что в случае УКЛИ важную роль играют механические эффекты и вызванные

ими гидродинамические движения. Для того чтобы термомеханические эффекты были существенны, должно выполняться условие сверхзвукового нагрева. При этом условии длительность τ_T создания нагретого слоя толщиной d_T короче звукового времени $t_s = d_T/c_s$, за которое гидродинамическое возмущение со скоростью звука c_s пробегает нагретый слой. Соответственно фазовая скорость d_T/τ_T формирования слоя нагрева больше скорости звука.

При воздействии оптического УКЛИ на толстую мишень из металла масштабы τ_T и d_T определяются двумя главными факторами. Это, во-первых, продолжительность по времени двухтемпературной (2Т) релаксации t_{eq} ($\tau_T = t_{eq}$), во время которой сравниваются температуры электронов T_e и ионов T_i . И, во-вторых, коэффициент электронной теплопроводности κ_{2T} в 2Т-состоянии (см., например, работу [5] и приведенные там ссылки); обычно $t_{eq} \approx 2$ –7 пс, $d_T \approx 50$ –140 нм, $t_s \approx 10$ –30 пс. Оценки, основанные на уравнениях теплового баланса для

*E-mail: nailinogamov@googlegmail.com

электронов и ионов [6], $C_i \partial T_i / \partial t = \alpha (T_e - T_i)$, имеют вид

$$t_{eq} \approx \frac{C_i}{\alpha} \frac{(T_i)_{fin}}{(T_e)_{max}} \sim \frac{\sqrt{\gamma/2}}{\alpha} \frac{(E_i)_{max}}{\sqrt{(E_e)_{max}}}, \quad (1)$$

$$d_T \approx \sqrt{\chi_{2T} t_{eq}}, \quad \chi_{2T} = \frac{\kappa_{2T}}{C_e}, \quad (2)$$

где C_i и $C_e = \gamma T_e$ — ионная и электронная теплоемкости, E_i и E_e — внутренние энергии ионной и электронной подсистем, $\gamma \sim 100$ Дж·м⁻³·К⁻², $(T_i)_{fin}$ — температура ионов и электронов после завершения 2Т-стадии, $(T_e)_{max}$ — максимальная температура электронов на 2Т-стадии, $\alpha \sim 10^{17}$ Вт·К⁻¹·м⁻³ — коэффициент электрон-ионного обмена энергией в конденсированной среде [7–9]¹⁾. Максимум ионной энергии $(E_i)_{max}$ достигается в конце 2Т-стадии.

Если приближенно положить, что $(E_i)_{max} \sim (E_e)_{max}$, и подставить эту оценку в соотношения (1), (2), то получим

$$t_{eq} \sim \frac{(\gamma/2)^{2/5}}{\alpha^{4/5} \chi_{2T}^{1/5}} F_{abs}^{2/5} \sim 8 \text{ [пс]} \frac{\gamma_{100}^{2/5}}{\alpha_{17}^{4/5} \chi_{10}^{1/5}} F_{100}^{2/5},$$

$$d_T \sim 90 \text{ [нм]} \frac{\gamma_{100}^{1/5} \chi_{10}^{2/5}}{\alpha_{17}^{2/5}} F_{100}^{1/5},$$

где $\gamma_{100} = \gamma/100$ Дж·м⁻³·К⁻²; $\alpha_{17} = \alpha/10^{17}$ Вт·м⁻³·К⁻¹; $\chi_{10} = \chi_{2T}/10$ см²/с; $F_{100} = F_{abs}/100$ мДж/см². Принято, что $\chi_{2T} \sim 10$ см²/с, поскольку оценка из молекулярно-кинетической теории дает $\chi \sim (1/3) l v_F = 20$ см²/с при свободном пробеге электрона $l = 3$ нм и скорости Ферми $v_F = 2000$ км/с.

Значения теплопроводности κ_{2T} могут в десятки раз превышать значения κ_{1T} в однотемпературных (1Т) состояниях [7, 9, 11]. В силу этого обстоятельства и с учетом того, что $\tau_T = t_{eq} \gg \tau_L$, глубина d_T (2) существенно превышает толщину δ скин-слоя. Запишем закон сохранения энергии с учетом изменения толщины прогретого слоя за время 2Т-релаксации: $(E_i)_{max} d_T \approx (E_e)_{max} \delta \approx F_{abs}$. Подставляя эти уравнения в соотношения (1), (2) и принимая $\delta = 15$ нм, получим

$$t_{eq} \text{ [пс]} \approx 4 \frac{\gamma_{100}^{1/3}}{\alpha_{17}^{2/3} \chi_{10}^{1/3}} F_{100}^{1/3},$$

$$d_T \text{ [нм]} \approx 65 \frac{\gamma_{100}^{1/6} \chi_{10}^{1/3}}{\alpha_{17}^{1/3}} F_{100}^{1/6}.$$

¹⁾ В работе [10] вычислен коэффициент α для диэлектрика. В работах [7–9] подсчитываются значения α только для металлов.

Данные формулы дают представление, во-первых, о характерных масштабах горячего слоя и, во-вторых, о степени влияния неопределенности в коэффициентах γ , α и κ на темп электрон-ионной релаксации и на толщину слоя прогрева d_T . Полагая $d_{crat} \sim d_T$, можно получить оценку глубины кратера d_{crat} выше порога абляции.

Возможны ситуации с оптическим лазером и металлом, когда $t_{eq} < \tau_L < t_s$. Тогда 2Т-состояния не возникают, а время τ_T равно длительности импульса τ_L . При этом глубина прогрева $d_T \sim \sqrt{\chi_{1T} \tau_L}$ немного меньше, чем глубина (2); $\chi_{1T} \sim 1$ см²/с.

Чем замечателен случай сверхзвукового нагрева $d_T/\tau_T > c_s$? Почему при быстром нагреве гидродинамические явления особенно существенны? Дело в том, что при сверхзвуковом нагреве вещество не успевает расширяться в соответствии с растущей внутренней энергией, которая увеличивается за счет поглощения энергии внешнего источника. Это означает, что имеет место изохорический нагрев: $\rho = \rho^0$, где ρ^0 — плотность вещества при нормальных условиях [4, 12–18]. В нагреваемом слое давление растет пропорционально поглощенной энергии. При фиксированной плотности $\rho = \rho^0$ давление будет порядка приращения внутренней энергии ΔE в расчете на единицу объема, поскольку параметр Грюнайзена — это число порядка единицы. Увеличение давления p (по сравнению с начальным значением $p = 0$) приводит вещество в движение на звуковом масштабе времени t_s . Скорости движения u порядка $p/z \sim \Delta E/z$, где $z = \rho c_s$ — акустический импеданс среды. Типичные для рассматриваемых условий приращения энергии порядка 1 эВ/атом, давления порядка 10 ГПа, а скорости $u \approx 0.4$ км/с. Наоборот, медленный нагрев ($\tau_T \gg t_s$) слабо повышает давление, поэтому в этом случае скорости движения малы, $u \ll \Delta E/z$.

Изохорический нагрев и термомеханические эффекты возникают не только в случае воздействия оптического УКЛИ на металлы. Для оптического фотона и металла, толщина скин-слоя $\delta \sim 10$ –30 нм является малой. Поэтому 2Т-теплопроводность κ_{2T} и коэффициент электрон-ионного теплообмена α [5, 7, 9], а не δ , определяют масштабы d_T и τ_T , см. (2). В слабопоглощающих средах (например, в полупроводниках с шириной запрещенной зоны больше энергии фотона или же в полимерах [19]) толщина d_T равна глубине поглощения излучения d_{att} . При d_{att} порядка нескольких микрон водораздел между сверхзвуковым и дозвуковым режимами нагрева проходит при длительностях импульса на-

грева τ_L порядка наносекунды²⁾. При этом эффекты теплопроводности обычно малосущественны на гидродинамической стадии. Одномерное приближение нельзя использовать, если радиус R_L лазерного пучка порядка или меньше глубины поглощения d_{att} ; см. пример с полимером [19]. При прочих равных условиях величина порога абляции по поглощенному флюенсу в Дж/см² возрастает примерно пропорционально глубине d_{att} , поскольку для преодоления прочности вещества нужно создать необходимую плотность энергии ΔE на единицу объема. При термофлуктуационном механизме нуклеации пороговое значение ΔE медленно (логарифмически) снижается с ростом глубины d_{att} из-за роста объема, в котором происходит нуклеация. Рост объема увеличивает предэкспоненциальный множитель в формуле для частоты нуклеации. Это замечание относится к вопросу о зависимости порогового флюенса от d_{att} . Темп деформации $\dot{V}/V \sim (u/c_s)/t_s = u/d_{att}$ также снижается с ростом величины d_{att} .

В случае лазеров, работающих в областях жесткого ультрафиолета или мягкого рентгена, частота излучения превышает плазменную частоту. Поэтому скин-слой отсутствует, отражение мало, поглощение фотонов происходит в основном при межзонных переходах. Важно, что по отношению к механизму поглощения для жестких фотонов пропадает резкое различие между металлами (нет щели в электронном энергетическом спектре в зоне проводимости) и полупроводниками и диэлектриками (щель имеется). В случае жестких фотонов оптический пробой отсутствует. Во время оптического пробоя длина d_{att} резко уменьшается по мере развития пробоя. При облучении жестким излучением глубина поглощения d_{att} может только возрастать при увеличении потока фотонов (для этого требуются экстремальные интенсивности [20, 21]). Этот рост вызван уменьшением числа электронов на определенной внутренней электронной оболочке из-за ионизации [20, 21] (полые ионы). На этой оболочке происходит преимущественное поглощение жестких фотонов заданной энергии.

Принципиальная разница между случаями металла и неметалла характерна для оптических фотонов (оптический пробой полупроводников и диэлектриков). В отличие от случая оптического лазера и металлов, когда глубина поглощения определяется скин-слоем, в случае жесткого излучения глуби-

на поглощения d_{att} (а значит и d_T) резко меняется от величин порядка 10 нм до величин порядка 1 мкм [22, 23] в зависимости от частоты жесткого фотона относительно краев зон внутренних электронных оболочек (см. примеры в работах [24, 25], связанные с металлами и кремнием). Соответственно вместе с глубиной прогрева сильно меняются пороги и структура остаточных повреждений облученного пятна [24, 25]. Другие примеры изохорического нагрева и термомеханических эффектов относятся к облучению пучками электронов [26] или ионов [27]. При этом значения d_{att} намного превышают глубины прогрева d_T (50–140 нм) оптическим УКЛИ из-за больших длин пробега частиц высоких энергий. В указанных случаях сверхзвуковым является нагрев при длительности импульса, ограниченной значением порядка наносекунд (если d_{att} порядка микрометра) и микросекунд при d_{att} порядка миллиметра.

Выше обсуждалась физика лазерного воздействия на однородные мишени с акцентом на термомеханическую абляцию. Обсуждение посвящено выделению условий осуществления термомеханического режима в максимально широком классе случаев, включающих, во-первых, воздействие коротких и длинных импульсов, во-вторых, лазеры с мягкими и жесткими фотонами, и, в-третьих, металлы, полупроводники и диэлектрики. Рассмотрены также случаи, когда абляция является одномерной и когда одномерным приближением пользоваться нельзя.

В анализируемом в данной работе случае тонких пленок ситуация изменяется по сравнению с однородными мишенями. В данной работе тонкими будем считать пленки, толщина d_f которых меньше толщины d_T прогретого слоя на облученной поверхности однородной мишени. Для объяснения экспериментов [28–33] рассмотрим термомеханическую абляцию тонких пленок, напыленных на диэлектрическую подложку, в случае оптических лазеров. Имеются две особенности, связанные с тонкими пленками. Во-первых, — это резкая неоднородность прогрева в системе пленка–подложка из-за малой теплопроводности подложки по сравнению с теплопроводностью металла. Таким образом, практически все тепло, поступившее в металл, остается в нем на временах порядка сотен пикосекунд и более (эти времена намного превышают звуковой масштаб $t_s \sim 10$ пс для пленок толщиной $d_f \sim 10$ –100 нм). Во-вторых, — неоднородность прочности мишени на растяжение в системе пленка–подложка, когда из-за ограниченной адгезии слабым местом является контакт пленка–подложка.

В однородной металлической мишени порог тер-

²⁾ Здесь речь идет об интенсивностях ниже порога оптического пробоя. При пробое концентрация свободных электронов резко меняется. Соответственно сильно уменьшается глубина поглощения d_{att} .

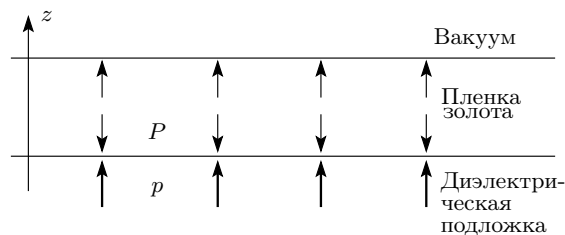


Рис. 1. Отталкивание пленки от подложки после изохорического нагрева пленки УКЛИ. Изохорический нагрев поднимает давление P в пленке золота. Изохорический означает, что подъем давления происходит быстро по сравнению с гидродинамическим временем d_f/c_s . Противодействие p подложки сообщает импульс пленке в направлении оси z через динамический контакт пленка–подложка. Если сила адгезии недостаточна, чтобы погасить набранный пленкой импульс, то пленка отрывается от подложки

момеханической абляции F_a оптическим УКЛИ в 2–3 раза выше порога плавления F_m [5, 34]. На пороге F_a и выше образуется поверхностный слой расплава толщиной d_m порядка теплового масштаба d_T . При $F > F_a$ разрыв металла происходит внутри слоя расплава. В случае пленки ситуация меняется. Пленка держится на стекле за счет адгезии. Имеется предельное адгезионное напряжение, при превышении которого происходит откол пленки от стекла. Как правило, максимальное адгезионное напряжение существенно меньше предела прочности в объеме металла. Тогда порог откола пленки от стекла находится ниже порога плавления пленки, т. е. даже нерасплавленная пленка отрывается от стекла при воздействии УКЛИ, если напряжения превышают предел адгезии. Причем откол происходит не в объеме пленки, а по контакту с подложкой (рис. 1).

Наша работа нацелена на объяснение явлений, наблюдаемых в опытах [1, 28–33]. В этих опытах использовались УКЛИ, освещающие пленки золота толщиной $d_f \sim 20\text{--}70$ нм, напыленные на диэлектрические подложки. Как видно из фотографий, приведенных в работах [1, 28–33], наблюдаемые явления происходят от сочетания эффектов гидродинамики и поверхностного натяжения. Предлагаемое ниже решение проблемы опирается на разбиение задачи на две стадии: начальную и капиллярную. На начальной стадии происходит ускорение пленки по нормали к плоскости подложки. Разгон пленки вызван противодействием подложки (см. рис. 1). Противодействие возникает как реакция подложки на

давление пленки на подложку. Длительность стадии ускорения определяется гидродинамическим временем $d_f/c_s \sim 10$ пс динамического контакта пленки с подложкой во время и после воздействия УКЛИ. Начальная стадия заканчивается, когда пленка отрывается от подложки.

Чтобы описать опыты [28–33], необходимо учесть влияние поверхностного натяжения. Капиллярная стадия имеет место, если пленка расплавлена и ее скорость, после отделения от подложки, не слишком велика. Масштаб капиллярных скоростей следует из сравнения поверхностной и кинетической энергий:

$$\pi R_L^2 \sigma \sim \pi R_L^2 \rho^0 d_f v_\sigma^2 / 2,$$

где R_L — радиус пучка УКЛИ, σ — коэффициент поверхностного натяжения жидкого металла, $\rho^0 = 19.3$ г/см³ — начальная плотность золотой пленки, d_f — начальная толщина пленки. Для типичных значений параметров $R_L \sim 1$ мкм, $\sigma \sim 10^3$ эрг/см², $d_f \sim 50$ нм имеем $v_\sigma \sim 50$ м/с. Пятно нагрева на поверхности пленки имеет максимум температуры в центре, поскольку мы рассматриваем УКЛИ с максимумом интенсивности на оси пучка. Тогда распределение скорости по пятну нагрева имеет наибольшее значение в центре. В таком случае оторвавшаяся пленка принимает форму купола, оболочка которого сформирована из вещества оторвавшейся пленки (рис. 2). Оценка продолжительности капиллярной стадии дает $t_\sigma \sim R_L/v_\sigma \sim 10$ нс. Как видим, продолжительности начальной и капиллярной стадий различаются на три порядка.

Кратковременность взаимодействия пленки и подложки (около 10 пс) по сравнению с капиллярным временем (около 10 нс) позволяет сильно упростить трудную трехмерную задачу, включающую гидродинамику движений подложки и пленки. При упрощенном подходе задача разбивается на два этапа. На первом этапе анализируется гидродинамика пленки совместно с подложкой. Рассматриваются поглощение УКЛИ, нагрев и релаксация электронной подсистемы, тепловое расширение пленки, генерация ударной волны (УВ) в подложке и откол пленки от подложки. Задача на этом этапе решается в одномерном (1D) приближении, поскольку диаметр пучка УКЛИ не менее чем на порядок превышает толщину пленки: $d_f \sim 10\text{--}100$ нм, $R_L \sim 1$ мкм и более. В разд. 2 вычисляются начальные скорости локального центра массы пленки и локальная температура в зависимости от локального значения поглощенной лазерной энергии $F_{abs}(x, y)$ [Дж/см²], где x, y — координаты в плоскости поверхности подложки (см. рис. 1 и 2). Второй этап начинается после отрыва

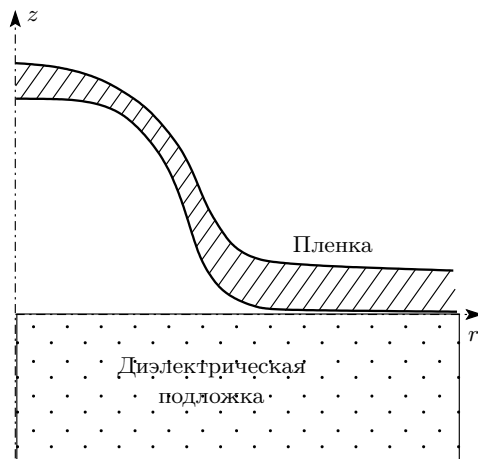


Рис. 2. Отслаивание и вспучивание пленки (блистеринг) после воздействия УКЛИ. В случае УКЛИ с максимумом интенсивности на оси пучка (например, распределение интенсивности по Гауссу) оторвавшаяся пленка принимает форму купола. При малой энергии, вложенной в пятно нагрева, поверхностное натяжение останавливает движение купола вверх по оси z и поворачивает пленку назад к подложке. При повышенных энергиях купол отрывается и улетает вверх, а в пленке на подложке остается дырка (кратер). На рисунке показана симметричная половина картины. Осью симметрии является ось z

ва пленки от подложки. На поверхности подложки область отрыва имеет форму пятна, ограниченного контуром. В разд. 3 описывается динамика пленки, закрепленной на контуре, под действием поверхностного натяжения.

Опыты [1, 28–33] имеют прямое отношение к технологиям будущего. В них наблюдается формирование нанокуполов и наноструек, которые найдут широкое применение в микроэлектронике, медицине и наноплазмонике [1, 2]. На сегодняшний день предложены три модели для объяснения этого важного явления. В первой из них методами молекулярной динамики (МД) рассматривается отскок пленки от абсолютно жесткой подложки [1]. Хотя такое допущение (недеформируемость подложки) сильно упрощает задачу³⁾, оно не может быть принято. Как будет видно ниже (разд. 2), наличие деформируемой подложки в 5–7 раз снижает скорость v_z отскока пленки. Небольшие скорости $v_z \sim v_\sigma$ необходимы, чтобы капиллярные явления (разд. 3) могли проявить себя (без них нет наноструй). В постановке с жесткой под-

ложкой снижать скорость v_z можно только за счет уменьшения поглощенной энергии F_{abs} . Но тогда мы опускаемся ниже порога плавления, и капиллярные эффекты пропадают. Необходимо соблюдать тонкий баланс между скоростями $v_z \sim v_\sigma$ и плавлением. Требуются небольшие скорости при достаточно высокой температуре. Как показано в данной работе, этого можно достичь, если на начальном этапе пленка расширяется в «мягкую» подложку⁴⁾.

Вторая модель [2] ограничена анализом динамики пленки до ее плавления. В такой постановке не удастся понять, каким образом формируются мощные потоки вещества, идущие в приосевую зону (ось z на рис. 2). Между тем именно эти потоки ответственны за образование струи на вершине нанокупола (разд. 3).

В третьей модели [33] анализ приповерхностной динамики отскока пленки и ее дальнейшего полета заменяется исследованием феноменологического уравнения Курамото–Сивашинского (КС). Это уравнение некоторые авторы применяли ранее для описания появления хаотических структур при лазерном воздействии. Образование струи связывают с особенностью уравнения КС [33]. При подходе с использованием уравнения КС вся динамика пленки «сидит» на подложке — нет отрыва пленки, нет пустого расширяющегося купола. В нашей работе сочетаются расчет отрыва пленки (разд. 2) и капиллярная теория (разд. 3). Это позволяет описать даже такой особый эффект, как образование контр-струи (см. ниже рис. 22). Данный эффект обнаружен недавно (см. рис. 7 в работе [28]).

2. ЛАЗЕРНЫЙ УДАР ПО ПЛЕНКЕ НА ПОДЛОЖКЕ

Поглощение лазерной энергии в интересующем нас диапазоне флюенсов $F_{abs} \sim 10\text{--}100$ мДж/см² и при изохорическом нагреве создает внутри пленки давления $\sim F_{abs}/d_f = 10F_{10}/d_{10}P$ [ГПа], где $F_{10} = F_{abs}/10$ [мДж/см²], $d_{10} = d_f/10$ [нм]. Давления таких амплитуд возникают за фронтом детонации химических взрывчатых веществ. Можно сказать, что лазер превращает металл пленки во взрывчатку с давлениями порядка десятков гигапаскалей и температурами T в тысячи кельвинов: T [К] $\sim 4000F_{10}/d_{10}$. Рассмотрим расширение такой «взрывчатки» на поверхности подложки (удар

³⁾ Поскольку исключает гидродинамику подложки.

⁴⁾ Мягкая означает, что акустический импеданс подложки мал по сравнению с импедансом пленки. В случае с жесткой подложкой положение обратное.

по подложке и отскок от нее). Распределение плотности поглощенной энергии F_{abs} однородно по поверхности пленки, см. рис. 1 (1D-постановка задачи). Требуется найти скорость центра масс пленки $v_z(F_{abs})$ после отскока от диэлектрика. В качестве диэлектрической подложки обычно используется стекло⁵⁾.

В разд. 2.1 представим используемую термодинамическую 2Т-модель и гидродинамические уравнения. В разд. 2.2 обсудим, каким образом протекают тепловые процессы, поскольку именно повышение внутренней энергии приводит вещество в движение. Будут изучены поглощение лазерной энергии, нагрев электронов, распространение тепла по электронной подсистеме и электрон-ионная релаксация, благодаря которой повышается температура решетки и происходит плавление. В разд. 2.3 представим описание процесса отрыва пленки при однородном вдоль поверхности пленки облучении (одномерная задача). В разд. 3 рассмотрен трехмерный отрыв пленки при неоднородном облучении.

2.1. Гидродинамические уравнения и термодинамическая модель

Одномерное движение пленки описывается следующими двухтемпературными (2Т) гидродинамическими уравнениями:

$$\rho(z^o, t) \frac{\partial z(z^o, t)}{\partial z^o} = \rho^o, \quad \frac{\partial z(z^o, t)}{\partial t} = u(z^o, t), \quad (3)$$

$$\rho^o \frac{\partial u}{\partial t} = -\frac{\partial P(z^o, t)}{\partial z^o}, \quad P = P_i + P_e, \quad (4)$$

$$\rho^o \left(\frac{E_e}{\rho} \right)_t = -q' - \frac{\rho^o}{\rho} \alpha (T_e - T_i) + \frac{\rho^o}{\rho} Q - P_e \frac{\partial u}{\partial z^o}, \quad (5)$$

$$\rho^o \frac{\partial (E_i/\rho)}{\partial t} = \frac{\rho^o}{\rho} \alpha (T_e - T_i) - P_i \frac{\partial u}{\partial z^o}, \quad (6)$$

где

$$Q = \frac{F_{abs}}{\sqrt{\pi} \tau_L \delta} \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_L^2}\right) \exp\left(-\frac{|z - z_g|}{\delta}\right),$$

$$(\dots) \equiv \frac{\partial}{\partial t}, \quad q' \equiv \frac{\partial q}{\partial z^o}, \quad q = -\frac{\rho \kappa}{\rho^o} \frac{\partial T_e}{\partial z^o}.$$

Ось z перпендикулярна плоскости пленки и подложки (см. рис. 1). Использована лагранжева координата z^o . До начала действия УКЛИ лагранжева координата z^o совпадает с эйлеровой координатой z :

⁵⁾ В работе [33] используется подложка из CaF₂.

$z^o \equiv z(z^o, t = -\infty)$. Функция $z(z^o, t)$ задает траекторию фиксированной материальной (лагранжевой) частицы. В одномерной постановке это плоскость, движущаяся вдоль оси z со скоростью u . В одномерной постановке перпендикулярные оси z скорости равны нулю. Уравнения (3) относятся к сохранению массы и кинематике движения. Масса на единицу площади, $d\sigma_S = \rho^o dz^o$, зажатая между плоскостями $z^o + dz^o$ и z^o , постоянна. Силовое уравнение имеет вид (4) — разница сил между плоскостями $z^o + dz^o$ и z^o определяет ускорение массы $d\sigma_S$.

Энергетические уравнения записаны отдельно для электронной подсистемы (5) и для ионной подсистемы (6) [6]. Теплопроводностью стекла на рассматриваемом масштабе времени пренебрегаем. В уравнениях (5), (6) дополнительно к тепловым членам учтены гидродинамические члены, связанные с работой $P dV$ в каждой из подсистем. Эти дополнения плюс гидродинамические члены отличают гидродинамическую 2Т-систему (3)–(6) от 2Т-уравнений энергии в пионерской работе [6].

Как видим, время отсчитывается от максимума интенсивности УКЛИ (формула для источника Q). Пространственно-временное распределение поглощенной энергии определяется функцией Q , длительность УКЛИ есть τ_L , а глубина поглощения равна толщине δ скин-слоя. Диссипация энергии электромагнитной волны происходит внутри металла вблизи границы пленки. В случае LIFT (laser induced forward transfer) [1] за z_g в формуле для Q принимаем границу стекло–золото, поскольку лазерный пучок идет через подложку. В случае LIBT (laser induced backward transfer) за z_g принимаем границу золотой пленки с вакуумом, поскольку лазерный пучок идет через вакуумный промежуток (см. рис. 1).

Уравнения 2Т-гидродинамики (3)–(6) дополняются термодинамической моделью 2Т-состояний конденсированной среды и моделью, которая описывает важнейшие кинетические коэффициенты — это коэффициенты теплопроводности κ и электрон-ионного теплообмена α . В данной работе при решении системы (3)–(6) 2Т-уравнение термодинамического состояния (2Т-УРС) берется таким, как в работе [35], а именно, 2Т-УРС представлено как сумма ионного и электронного вкладов, соответственно свободная энергия равна

$$F(\rho, T_i, T_e) = F_i(\rho, T_i, T_e) + F_e(\rho, T_i, T_e). \quad (7)$$

Имеется ряд подходов к вычислению электронного вклада, начиная от моделей Ферми и Томаса–Ферми и до квантовых вычислений методом

функционала плотности (density functional theory, DFT) [8, 9, 36–51]. Более пятидесяти лет учитывается электронная добавка F_e в однотемпературное (1Т, $T_e = T_i$) УРС. Эта добавка становится существенной при высоких температурах [52] (см. также [36, 37]). Ранее добавка F_e подсчитывалась в приближении Ферми. Подход, при котором электроны описываются в виде идеального газа (в этом заключается приближение Ферми), был распространен и на 2Т-ситуацию [40, 41]. Современные работы отталкиваются от DFT-моделирования [8, 9, 35, 39, 42, 43, 45, 46, 48–51].

В настоящей работе используется комбинация широкодиапазонного УРС [36, 37, 53, 54] и DFT-расчетов [35]. Наши DFT-вычисления хорошо согласуются с широкодиапазонным УРС по «холодным» кривым металлов [5, 35, 55, 56]. В связи с опытами [1, 28–33] на пленках золота нас интересует область состояний с плотностями от газовой до твердотельной и с температурами ионов T_i до нескольких килокельвинов и электронов T_e до нескольких электронвольт. В этой области состояний и при фиксированной плотности ρ будем пренебрегать влиянием, 1) ионной температуры T_i на электронный спектр и 2) электронной температуры T_e на упругие постоянные (электроны обладают фермиевскими энергиями, и добавление к ним нескольких электронвольт мало что меняет [38])⁶⁾. При этих двух предположениях в выбранной области состояний вместо выражения (7) можно приближенно записать

$$F(\rho, T_i, T_e) = F_i(\rho, T_i, T_e) + F_e(\rho, T_e). \quad (8)$$

Здесь зависимость функции F_e от аргумента T_i опущена согласно первому предположению. Функция $F_i(\rho, T_i, T_e)$ слабо зависит от электронной температуры (второе предположение). Поэтому в (8) в функции $F_i(\rho, T_i, T_e)$ положено $T_e = T_i = T$. Сумма

$$F(\rho, T, T) = F_i(\rho, T, T) + \tilde{F}_e(\rho, T)$$

используется при расчете широкодиапазонного 1Т-УРС [36, 37, 53, 54]⁷⁾. При этом электронный вклад $\tilde{F}_e(\rho, T)$ вычисляется в приближении, близком к приближению идеального газа. Чтобы учесть уточненный нами электронный вклад, вычитаем функцию $\tilde{F}_e(\rho, T)$. Следовательно,

⁶⁾ Второе предположение неприменимо для полупроводников и диэлектриков, поскольку оно исключает нетепловое плавление [57]. Кроме того, известно, что имеется заметное упрочнение золота при значительном повышении T_e [39, 46]. В нашем приближении этим эффектом приходится пренебречь.

⁷⁾ В работах [36, 37, 53, 54] вместо $F(\rho, T, T)$ используется обозначение $F(\rho, T)$.

$$F_i(\rho, T_i, T_i) = F(\rho, T_i, T_i) - \tilde{F}_e(\rho, T_i).$$

Таким образом, в (8) обозначение $F_i(\rho, T_i, T_i)$ означает 1Т-УРС с вычтенным электронным вкладом. Отметим, что при температурах T_i до нескольких килокельвинов электронный вклад $F_e(\rho, T_i)$ мал в сравнении с ионным вкладом $F_i(\rho, T_i, T_i)$.

В принятом приближении (8) электронный вклад F_e не зависит от температуры ионов T_i ($T_i \approx 2\text{--}5$ кК). Поэтому этот вклад допустимо вычислять при нулевой температуре ионов $T_i = 0$ (холодная решетка). В соответствии с этим для холодной решетки с помощью DFT-подхода был вычислен электронный одночастичный спектр золота при $T_e = 0$. По этому спектру, аналогично тому, как это было сделано в работе [8], была найдена электронная энергия E_e . Принятая в настоящей работе аппроксимация электронной энергии имеет вид

$$E_e = 17.513 \cdot 10^{-10} \left(\frac{1 - \text{tn}}{2} + 1.4 \frac{1 + \text{tn}}{2} \right) T_e^2, \quad (9)$$

$$\text{tn} = \frac{2}{\pi} \arctg \frac{T_e - 3500}{700},$$

где E_e приведено в кДж/г, T_e — в К. Аппроксимация (9) воспроизводит рост электронной теплоемкости при увеличении температуры T_e из-за возбуждения d -электронов. Давление электронов вычислялось по формуле $P_e = (2/3)E_e\rho$. В приведенных выше приближениях добавка F_e имеет смысл электронного теплового вклада в уравнение Ми–Грюнайзена.

Для решения системы (3)–(6) требуются коэффициенты электрон-ионного теплообмена α и теплопроводности κ . Первый из них брался из работ [7–9]. Теплопроводность золота в 2Т-условиях подсчитывалась по формуле

$$\kappa = \frac{1}{3} \frac{C_e v^2}{\nu},$$

где $C_e = \rho dE_e/dT_e$ — теплоемкость на единицу объема, величина E_e дается формулой (9), $v^2 = v_F^2 + 3k_B T_e/m_e$, $m_e v_F^2/2 = 5.5$ эВ — энергия Ферми E_F ; $E_F/k_B = 64$ кК, $E_F/\hbar = 8.4$ фс^{−1}. Частота ν равна сумме частот $\nu_{ei} + \nu_{ee}$ электрон-ионных и электрон-электронных столкновений. Принималось, что $\nu_{ee} = (E_F/\hbar)(k_B T_e/E_F)^2$ [58]. Частота ν_{ei} находилась по удельному электрическому сопротивлению по справочным данным [59]. Она равна $\nu_{ei} [\text{с}^{-1}] = 1.2 \cdot 10^{11} T_i (\rho^0/\rho)^{1.3}$ в твердой фазе и $\nu_{ei} [\text{с}^{-1}] = (0.34 + 2.7 \cdot 10^{-4} T_i) (\rho^0/\rho)^{1.3} \cdot 10^{15}$ в жидкой фазе; здесь ионная температура T_i берется в кельвинах,

$\rho^o = 19.3 \text{ г/см}^3$ — плотность золота при нормальных условиях. Множитель $(\rho^o/\rho)^{1.3}$ приближенно аппроксимирует начальный участок падения проводимости с уменьшением плотности [60]. Поскольку наш гидродинамический код использует широкодиапазонное многофазное УРС, нам известен мгновенный фазовый состав в каждой лагранжевой частице. В слое плавления частота ν_{ei} подсчитывалась по приведенным формулам для твердой и жидкой фаз с учетом объемной доли фаз в двухфазной смеси.

2.2. Тепловые процессы

Тепловых процессов три: поглощение лазерной энергии в скин-слое золота толщиной примерно 15 нм для используемых оптических лазерных систем с энергией фотона 1–1.5 эВ; передача поглощенной энергии в толщу пленки потоком q в уравнении (5) за счет электронной теплопроводности; сближающая температуры электрон-ионная температурная релаксация, за которую отвечает слагаемое $\alpha(T_e - T_i)$. Теплопроводностью диэлектрической подложки будем пренебрегать на рассматриваемых масштабах времени. Поэтому тепловые явления сосредоточены в пленке золота. В 2Т-условиях теплопроводность велика, пленки [1, 28–33] тонкие, и прогрев пленки происходит чрезвычайно быстро. Соответственно для интерпретации опытов [1, 28–33] детальные знания о коэффициенте теплопроводности не очень существенны⁸⁾. Более важными оказываются значения коэффициента электрон-ионного теплообмена α и давления электронов P_e , поскольку релаксация продолжается заметный отрезок времени.

На рис. 3 показан типичный пример из многочисленных расчетов разных вариантов. Численно решается система уравнений (3)–(6) 2Т-термогидродинамики. Известно [5], что на 2Т-стадии в однородных объемных мишенях электронная тепловая волна распространяется со сверхзвуковой скоростью — происходит «квазигомогенный» нагрев слоя толщиной d_T . В случае тонких пленок ($d_f < d_T$) это явление приводит к быстрому выравниванию электронной температуры по пространству (см. рис. 3). Уже к первой пикосекунде разность температур

$$\Delta T_e(t) = T_e(z^o = 60 \text{ нм}, t) - T_e(z^o = 0, t)$$

на сторонах пленки снижается до 7 % от средней по границам температуры

⁸⁾ Коэффициент теплопроводности важен при определении глубины прогрева d_T и порога термомеханической абляции на объемных мишенях.

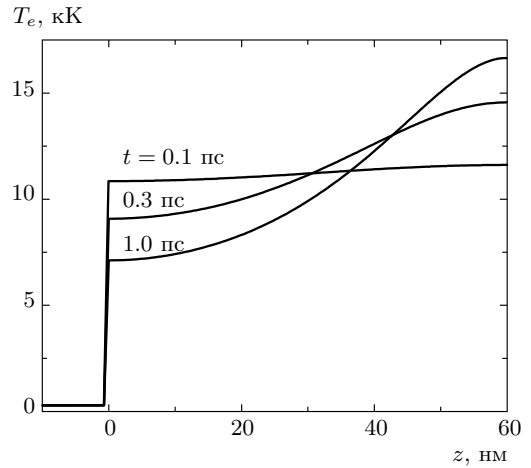


Рис. 3. Распространение тепловой волны и быстрое выравнивание электронной температуры T_e по пространству пленки толщиной $d_f = 60 \text{ нм}$. Поглощенная энергия $F_{abs} = 40 \text{ мДж/см}^2$. Точка $z = 0$ соответствует положению контакта стекло–золото до прихода УКЛИ на контакт. Стекло находится слева, золото — справа. УКЛИ освещает пленку справа, со стороны вакуума. Время t отсчитывается от максимума УКЛИ. Длительность УКЛИ $\tau_L = 100 \text{ фс}$, толщина скина $\delta = 15 \text{ нм}$

$$\bar{T}_e(t) = \frac{1}{2}[T_e(z^o = 60 \text{ нм}, t) + T_e(z^o = 0, t)],$$

$\Delta T_e(t = 3 \text{ пс})/\bar{T}_e(t = 3 \text{ пс}) < 10^{-3}$. Узкие пики на рис. 4, 5 обусловлены быстрым распространением тепла из скин-слоя $\delta = 15 \text{ нм}$ в пленку толщиной $d_f = 60 \text{ нм}$.

Процесс выравнивания электронной T_e и ионной T_i температур проиллюстрирован на рис. 4. Он связан с коэффициентом α в энергетических уравнениях (5), (6). На тонких пленках золота процесс выравнивания температуры $T_e(z, t)$ намного опережает ход электрон-ионной температурной релаксации (рис. 3, 4). Как видно из рис. 4, температурная релаксация продолжается десятки пикосекунд и не заканчивается даже к моменту $t_{spall} = 35.3 \text{ пс}$ отрыва (spall) пленки от стекла (динамическим явлениям и отрыву пленки посвящен следующий подраздел). Реальная релаксация идет быстрее (рис. 5). Реальная релаксация связана с передачей поглощенной энергии F_{abs} , запасенной в электронной подсистеме, из электронов в ионы. Уже в момент $t = 5.4 \text{ пс}$ эти энергии сравниваются, хотя электроны в 8 раз горячее (ср. рис. 4 и 5). Разумеется, это связано с малостью электронной теплоемкости по сравнению со значением $3k_B$ при температурах T_e в несколько килоэлектронвольт.

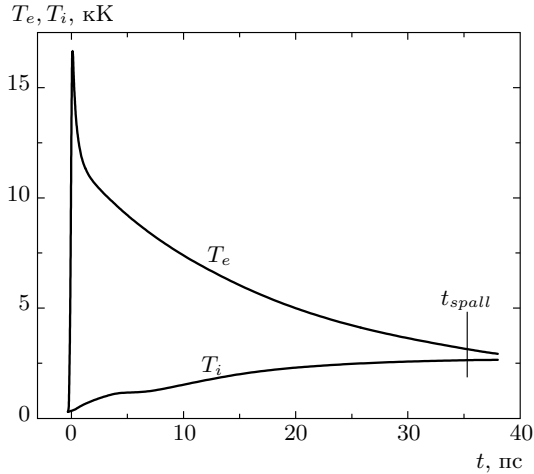


Рис. 4. Вываживание электронной $T_e(z^o = 60 \text{ нм}, t)$ и ионной $T_i(z^o = 60 \text{ нм}, t)$ температур вследствие электрон-ионной релаксации; $\tau_L = 100 \text{ фс}$, $\delta = 15 \text{ нм}$. Приведены графики температур на границе между золотом и вакуумом. Энергия УКЛИ поглощается в скин-слое на этой границе. Максимум $T_e = 16.7 \text{ кК}$ достигается в момент $t = 0.11 \text{ пс}$. Начальные температуры золота и стекла равны 300 К . Как сказано, при $t > 1 \text{ пс}$ мала вариация T_e по нормали к пленке. Это означает, что пространственный профиль $T_i(z, t)$ примерно однороден по нормали к пленке. В момент t_{spall} пленка отрывается от подложки

Как протекает нагрев ионной подсистемы показано на рис. 6. Объемным источником нагрева является слагаемое $\alpha(T_e - T_i)$ в уравнении (6). После быстрого выравнивания температуры T_e (см. рис. 3) мощность источника нагрева примерно однородна по координате z . На профиль температуры $T_i(z, t)$ влияет также член $P_i \text{ div } u$, связанный с работой $P dV$ и гидродинамическим движением.

В принятом выше приближении (8) пренебрегается влиянием возбуждения электронов на упругие постоянные. Это означает, что кривая плавления $T_m(P)$ слабо зависит от электронной температуры T_e . Кроме того, в наших гидродинамических расчетах используется термодинамическое УРС. Следовательно, наши расчеты не описывают кинетику плавления. Это заметный недостаток, если речь идет об окрестности порога плавления. Спинодаль перегретого кристалла $T_s(P)$ располагается на 25–40% [61] выше кривой плавления: $T_s(P) \approx (1.25 - 1.4)T_m(P)$. В случае $F_{abs} = 40 \text{ мДж/см}^2$ (см. рис. 3–6) ионная температура поднимается до значений примерно 2 кК (см. рис. 6). Температуры около 2 кК соот-

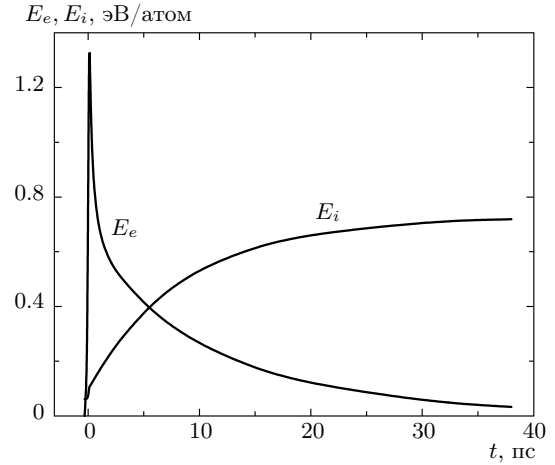


Рис. 5. Перекачка энергии электронов в ионы при $T_e > T_i$. Видим, что в электронах остается менее 22% от суммарной энергии $E_e + E_i$ при $t > 15 \text{ пс}$. Представлены зависимости от времени энергий в лагранжевой частице на границе золото–вакуум, $z^o = 60 \text{ нм}$. Расчет с параметрами, приведенными в подписях к рис. 3 и 4

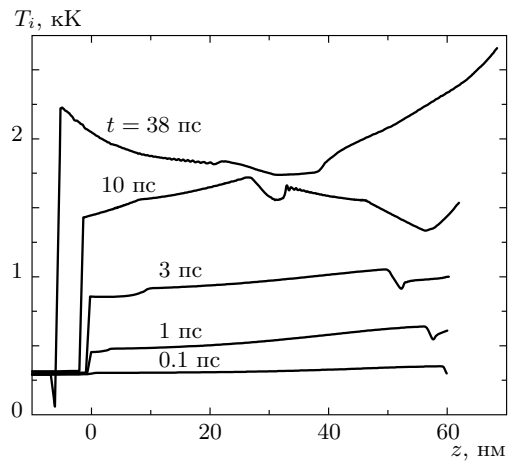


Рис. 6. Нагрев ионов объемным источником — горячими электронами — за счет члена $T_e - T_i$ в уравнениях (5), (6). Параметры те же, что и в случае рис. 3–5

ветствуют окрестности спинодали $T_s(P)$. При таких амплитудах перегрева кинетические эффекты не существенны.

При высоких скоростях распространения слоя плавления по веществу пленки возникает двухфазная пространственная область со смесью твердой и жидкой фаз. Локальное объемное содержание фаз в

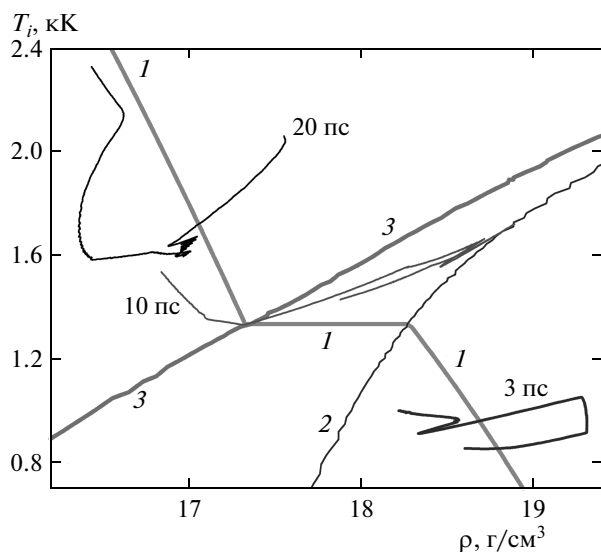


Рис. 7. Эволюция мгновенного пространственного профиля $T_i[\rho(x, t), t]$ ионной температуры под действием объемного нагрева ионной подсистемы: 1 — бинодаль; 2 — солидус; 3 — ликвидус. Эволюция идет в направлении от твердого тела к расплаву. Показаны профили на моменты времени $t = 3, 10, 20$ пс. На временах около 10 пс происходит пересечение зоны двухфазной смеси кристалл–жидкость. Описание фазовых кривых см. в тексте. Параметры воздействия и пленки такие же, как в случае рис. 3–6

смеси постепенно меняется с течением времени. Высокие скорости пространственного расширения зоны перехода кристалла в расплав обусловлены высокими скоростями распространения электронной тепловой волны в случае УКЛИ (см. рис. 3). Соответственно, электронная температура быстро выравнивается по толщине пленки. Поэтому нагрев ионной подсистемы идет примерно однородно по пространству (см. рис. 6). Следовательно, с течением времени примерно однородно по пространству меняется фазовый состав вещества пленки. Положение осложняется тем, что из-за растяжения золота в волнах разрежения возникают участки, на которых вещество пересекает бинодаль и переходит в метастабильное состояние. Это ясно иллюстрирует рис. 7.

На рис. 7 показана фазовая диаграмма золота согласно широкодиапазонному УРС [36, 37, 53, 54]. Бинодаль (кривая 1) отделяет двухфазную область пар–конденсированная фаза. Горизонтальный участок с $T_i = 1337$ К на бинодали соответствует тройной точке. Солидус (кривая 2) отделяет кристалл от

двухфазной смеси твердой и жидкой фаз. Ликвидус (кривая 3) — верхняя граница двухфазной смеси твердой и жидкой фаз при равновесном плавлении. На бинодаль наложены три профиля $T_i(\rho, t)$ распределений $\rho(z^o, t)$, $T_i(z^o, t)$ по толщине пленки золота. Мгновенные профили представляют собой отдельные кривые, на которых на фазовой плоскости на рис. 7 температура T_i поднимается снизу вверх от нижней кривой к средней и от средней кривой к верхней. На рис. 7 более высокие температуры находятся сверху. На конкретном мгновенном профиле более горячие по температуре T_i точки располагаются ближе к границе между золотом и вакуумом (см. рис. 6). Это связано с тем, что в варианте, соответствующем рис. 3–7, пленка нагревается лазером со стороны вакуума.

На отрезке времен $t \approx 10$ пс профили $T_i(\rho, t)$ пересекают двухфазную полосу солидус–ликвидус. Это означает, что все золото пленки плавится. Любопытно, что встреча волн разрежения происходит именно на отрезке времен, относящихся к плавлению. Сказанное относится к случаю с $F_{abs} = 40$ мДж/см². Две волны разрежения [14, 16], бегущие по пленке от границ с вакуумом и со стеклом, встречаются примерно посередине пленки. Обратите внимание на провал, соответствующий середине пленки на рис. 6, на профиле $t = 10$ пс. Вместе с уменьшением температуры T_i к краям пленки этот провал сигнализирует о том, что произошла встреча двух волн разрежения.

На профилях имеются участки, на которых вещество находится в растянутом состоянии с отрицательным ионным давлением $P_i < 0$. Во-первых, это связано с тем, что всегда положительное электронное давление растягивает конденсированную фазу в волне разрежения (см. обсуждение данного обстоятельства в работах [55, 56, 62]). Во-вторых, парциальные (P_e, P_i) и суммарное ($P = P_e + P_i$) давления меняются из-за передачи энергии от электронов ионам. Поэтому волны разрежения не являются строго автомодельными. На участках с $P_i < 0$ вещество переходит в метастабильное состояние. Амплитуда растяжения недостаточна для разрыва конденсированной фазы на наших масштабах времени. Участки профилей с $P_i < 0$ находятся под бинодалью 1 на рис. 7. Отметим, что в данном варианте широкодиапазонного УРС, солидус 2 и ликвидус 3 продолжают в метастабильную область [18].

Профиль с $t = 20$ пс на рис. 7 относится к этапу, на котором область растяжения приближается к контактной границе между пленкой (золото) и подложкой (стекло.) Поэтому более горячий участок,

Таблица. Фазовый состав, время t_{spall} откола и скорость v_{cm} центра масс пленки толщиной $d_f = 60$ нм после откола; $n^o = 6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$ — начальная концентрация атомов золота

$F_{abs}, \text{ мДж/см}^2$	10	20	30	40
$F_{abs}/d_f n^o, \text{ эВ/атом}$	0.17	0.35	0.52	0.69
$t_{spall}, \text{ пс}$	25	28.5	37	35
$T(t_{spall}), \text{ кК}$	0.9	1.337	1.7	2.4
Количество жидкой фазы, %	0	20	100	100
$v_{cm}, \text{ м/с}$	12.6	25	53	70

соответствующий золоту вне окрестности контакта, находится под бинодалью. Только участок возле контакта остается в сжатом состоянии. Далее волна разрежения, идущая со стороны вакуума, выходит на контактную границу, давление на этой границе снижается до нуля. Если пренебречь когезией между стеклом и золотом, то в момент t_{spall} , когда давление на контакте $P_c(t)$ обращается в нуль, пленка отделяется от подложки (см. разд. 2.3, посвященный динамическим проявлениям).

Почему в момент t_{spall} , когда $P_c(t) = 0$, происходит отделение пленки? Причина проста. Если бы отделение не произошло, то функция $P_c(t)$ стала бы отрицательной: $P_c(t) < 0$ при $t > t_{spall}$. Тогда как по предположению напряжение P_{coh} когезии золота на стекле мало. Рассмотрим ситуации с конечными значениями механической прочности контакта. Пусть функция $\Delta v(P_{coh})$ дает зависимость скорости расхождения границ стекла и золота в момент откола t_{spall} , определяемый уравнением $-P_c(t_{spall}) = P_{coh}$. Отметим, что скорость $\Delta v(P_{coh})$ обращается в нуль при $P_{coh} = 0$ и растет с ростом величины P_{coh} . Таким образом, при малом напряжении когезии пленки к подложке ($P_{coh} \approx 0$) зазор между границами пленки и подложки при $t > t_{spall}$ расширяется медленно.

На рис. 3–7 анализируется случай пленки $d_f = 60$ нм и $F_{abs} = 40$ мДж/см². Пленка отрывается от стекла в момент времени $t_{spall} = 35$ пс (см. таблицу). Полет пленки после откола происходит в расплавленном состоянии (см. рис. 7). Посмотрим, как величина поглощенной энергии влияет на фазовое состояние при других значениях F_{abs} . В таблице приведены значения моментов времени откола t_{spall} при пренебрежении механической прочностью контакта

стекло–пленка. Вместе со значениями t_{spall} даются величины скоростей центра масс пленки v_{cm} после отрыва пленки от стекла. Они понадобятся нам в разд. 2.3.

Таблица необходима для определения порога плавления, выше которого пленка после отрыва летит в полностью расплавленном состоянии. Она заменяет графики, приведенные на рис. 7 для $F_{abs} = 40$ мДж/см², для случаев с другими значениями F_{abs} . Из таблицы следует, что флюенс $F_{abs} = 10$ мДж/см² недостаточен для плавления. В этом случае на этапе динамического взаимодействия пленки со стеклом ($t < t_{spall}$) и после отрыва ($t > t_{spall}$) пленка остается в твердом состоянии. Поэтому доля жидкой фазы равна нулю. Количество жидкой фазы приведено в таблице. Воздействие УКЛИ нагревает металл до 0.9 кК. Начальная температура равна 0.3 кК. Приращение температуры ΔT легко оценить, записывая баланс энергии $d_f C \Delta T = F_{abs}$. При $d_f = 60$ нм, $C \approx 3k_B n^o$, $n^o \approx 6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, $F_{abs} = 10$ мДж/см² находим $\Delta T = 0.67$ кК. Эта оценка примерно на 10 % завышает разность температур, поскольку не учитывает энергию, находящуюся в волне сжатия в стекле. В момент $t_{spall} = 25$ пс кинетическая энергия пленки составляет 0.3 % от энергии F_{abs} . Кинетическая энергия направленного движения $(1/2)\rho^o d_f v_{cm}^2$ в момент $t_{spall} = 25$ пс равна 0.18 % от энергии F_{abs} .

При $F_{abs} = 20$ мДж/см² расчет с равновесным УРС показывает, что еще до момента откола золото достигает температуры тройной точки (см. таблицу). В расчетах с равновесным УРС плавление происходит быстрее, чем при учете кинетики плавления. Этот эффект существен, если перегревы невелики и не выходят за спинодаль перегретой твердой фазы. Как уже упоминалось, температура на спинодали на 25–40 % [61] превосходит температуру на кривой плавления. Вариант с $F_{abs} = 20$ мДж/см² относится к случаю малых перегревов. Поэтому, видимо, в момент откола золото находится в состоянии перегретой твердой фазы. Частичное плавление происходит позже, уже в полете. Порог плавления находится между значениями 20 и 30 мДж/см². При $F_{abs} = 30$ мДж/см² золото плавится еще до откола от стекла. При этой энергии мгновенное распределение фазового состава по пленке пересекает двухфазную область расплав–кристалл в интервале времен от 9 до 21 пс. Процесс пересечения двухфазной полосы при $F_{abs} = 40$ мДж/см² проиллюстрирован на рис. 7.

В нашей постановке одной границей пленки является вакуум, а другой — стекло. Исследованиям

динамики свободной пленки, когда обе границы — это границы с вакуумом, посвящены работы [63, 64] (см. также [65]). В этих работах определены пороги плавления и абляции в зависимости от значений параметра $F_{abs}/df n^0$, приведенного в таблице. Данные таблицы согласуются с работами [63, 64] по порогу плавления.

2.3. Динамическое поведение

Причиной гидродинамического движения пленки и подложки является тепловое расширение золота. Поэтому динамические явления анализируются после тепловых. В данном подразделе рассматривается формирование и распространение двух волн разрежения в пленке и распространение волны сжатия в стекле. Обнаружены два новых любопытных эффекта. Во-первых, это «след» сверхбыстрого роста и снижения электронного давления P_e . След образуется на ультракороткой стадии сверхбыстрого роста и снижения давления P_e во время действия УКЛИ чрезвычайно малой длительности $\tau_L \sim 0.1$ пс. Образовавшись, след путешествует по характеристикам, идущим от границы с вакуумом в толщу пленки и затем стекла.

Во-вторых, интересным является процесс преломления и отражения волны разрежения, идущей от границы золото–вакуум, на контакте пленка–стекло с большим отношением акустических импедансов. Отмеченный след разделяется на два (прошедший и отраженный) во время преломления и отражения волны разрежения. Процесс отражения существенным образом сказывается на наборе импульса пленкой за время динамического взаимодействия между золотом и стеклом. Набранный импульс определяет скорость центра масс пленки v_{cm} (см. таблицу) после ее отделения от стекла. От распределения энергии $F_{abs}(x, y)$ по пятну освещения и функции $v_{cm}(F_{abs})$ зависит форма купола, который образует отслоившаяся пленка (см. рис. 2). Основной целью, стоящей перед одномерным гидродинамическим расчетом, является определение температуры $T(F_{abs})$ и скорости $v_{cm}(F_{abs})$ оторвавшейся пленки. Эти сведения требуются для решения трехмерной задачи о полете пленки. Трехмерной задаче посвящен разд. 3.

На рис. 8 показаны профили A , B и C волны разрежения, бегущей от границы с вакуумом. В конденсированной среде волна разрежения имеет вид, отличный от вида в случае газовой среды [4, 12, 13, 66]. Это связано с тем, что в конденсированной среде, в отличие от газа, имеется конечное сопротивление растяжению и волна разрежения состоит из участка

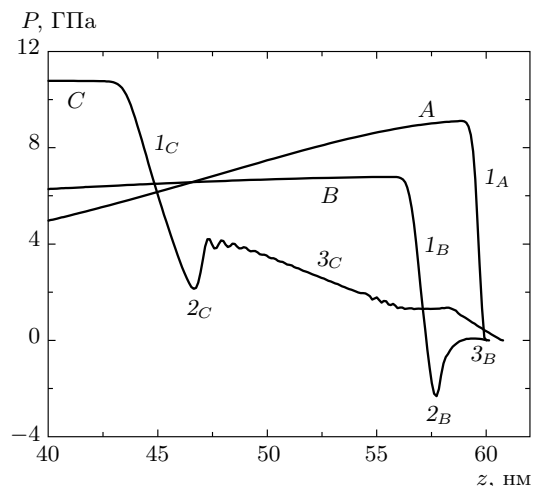


Рис. 8. Распространение волны разрежения от вакуумной границы в толщу пленки (справа налево). Профили A , B и C соответствуют моментам времени $t = 0.1, 1, 5$ пс. Параметры УКЛИ и пленки, как на рис. 3–7

спада давления и плотности и участка постоянного течения (плато, или полочка). На плато давление равно давлению внешней среды. При расширении в вакуум давление на плато равно нулю, а вещество на плато находится на бинадали, показанной на рис. 7. Соответственно, профили на рис. 8 имеют участки 1 крутого спада давления и участки «плато» 3. Чем меньше амплитуда волны, тем точнее течение описывается формулами линейной акустики и тем короче и круче участок спада давления 1. Из-за нелинейных эффектов крутизна участка 1 убывает со временем, поскольку скорость звука больше при большем давлении. Мерой нелинейности является отношение амплитуды давления к объемному модулю K ; для золота $K = 180$ ГПа. К моменту 0.1 пс плато на профиле еще не сформировалось (см. рис. 8). В нашей ситуации давление в толще пленки переменное по времени из-за электрон-ионного теплообмена. Поэтому вместо точного плато с нулевым градиентом давления и нулевым давлением, мы имеем участок «квазиплато» 3 с небольшим градиентом давления и небольшим давлением. Точное плато и автомодельный участок 1 соответствуют стационарной однородной ситуации [4, 12, 13, 66].

Обратим внимание на необычный провал 2 в профилях давления на рис. 8. Он располагается в изломе между участком 1 и квазиплато и движется налево вместе с этим изломом. Это означает, что провал бежит по характеристикам волны разрежения и

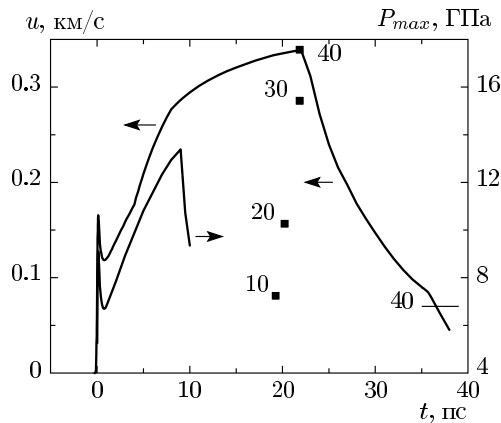


Рис. 9. Эволюция во времени скорости u границы золото–вакуум и максимального полного давления P_{max} при $F_{abs} = 40$ мДж/см². Значения $P_{max}(t)$ определяются максимальным значением на мгновенном профиле скорости, относящемся к моменту времени t . Квадраты соответствуют моменту времени и величине максимальной скорости вакуумной границы. Цифры 40, 30, 20 и 10 дают значения энергии F_{abs} . Горизонтальный отрезок с цифрой 40 дает величину скорости центра масс v_{cm} из таблицы. Обратите внимание на большое отношение скорости границы (квадрат 40) и скорости v_{cm} (отрезок 40)

что он образовался на границе с вакуумом в момент $t \approx 0$. Распространение провала справа налево можно проследить и по локальным понижениям ионной температуры T_i на рис. 6, на котором видно, что на момент $t = 10$ пс провал достигает середины пленки.

Внешне провал напоминает «Z-волну», состоящую из участка сжатия $P > 0$ и участка растяжения $P < 0$. Такая волна является типичной. Она всегда образуется вследствие термомеханического воздействия на толстую мишень, если мишень толще, чем d_T . В работах [67] (см. рис. 1 в [67]) и [68] приводится x, t -диаграмма, на которой видно, что участки $P > 0$ и $P < 0$ распространяются в паре. Профили давления с парой участков $P > 0$ и $P < 0$ показаны в работах [65, 69, 70]. Как образуется Z-волна, поясняется в статье [71]. Z-волна формируется вследствие пространственной неоднородности быстрого (сверхзвукового, изохорического) прогрева вещества у границы мишени. Неоднородность характеризуется толщиной d_T слоя прогрева. Соответственно участки Z-волны с положительным и отрицательным давлениями имеют протяженность порядка d_T .

Однако в нашей ситуации толщина провала (длина промежутка по оси z , который занимает провал)

намного меньше масштаба неоднородности d_T , который превышает толщину пленки $d_f = 60$ нм. Чтобы понять причины формирования провала, рассмотрим зависимости от времени скорости границы с вакуумом и максимума полного давления. Эти зависимости представлены на рис. 9. Видим, что существует короткий резкий пик полного давления и связанный с ним пик скорости границы. Этот же пик проявляется на зависимостях электронной температуры и энергии на рис. 4 и 5. Появление пика полного давления $P = P_i + P_e$ обусловлено высоким темпом выделения тепла в скин-слое из-за чрезвычайной кратковременности лазерного воздействия: $\tau_L = 100$ фс. Затем происходит резкий спад электронного вклада в давление вследствие быстрого пространственного распространения тепла из скин-слоя. Это проиллюстрировано выше на рис. 3 — видно, что выравнивание температуры T_e по пленке занимает лишь одну пикосекунду.

Снижение величин T_e и P_e в силу электрон-ионного теплообмена продолжается гораздо дольше по сравнению с их снижением из-за теплопроводности, и поэтому не имеет отношения к формированию провала. Из рис. 9 видно, что после резкого первого пика при $t \approx 0$ полное давление начинает расти на временах, определяемых электрон-ионным теплообменом. Этот рост связан с тем, что ионный параметр Грюнайзена $\Gamma_i \approx 2$ больше, чем электронный параметр Грюнайзена $\Gamma_e \approx 1$ [35]. Соответственно, при малом изменении удельного объема полное давление растет по мере того, как энергия переходит из электронной подсистемы в ионную.

Появление растяжения вещества у границы связано с тем, что сначала скорость границы была большей, а несколько позже снизилась. Поэтому более глубокие слои тормозят быстро летящий слой у границы. Таким образом, подъем и снижение давления (резкий пик на рис. 9) приводят к появлению слоя с растяжением и отрицательным давлением. Эта ситуация соответствует профилю B и провалу 2_B на рис. 8. Далее давление начинает расти и граница начинает относительно (относительно пика при $t \approx 0$) медленно ускоряться (см. рис. 9). Условия для растяжения вещества у границы пропадают. Но след провала, созданного на ранней стадии $t \approx 0$, переходит в волну разрежения и распространяется по характеристикам и, таким образом, сохраняется. При этом давление внутри следа становится положительным из-за роста полного давления и ускорения границы (см. пример с профилем C и провалом 2_C на рис. 8). При этом форма провала сохраняется. Ширина его медленно увеличивается из-за зависимости скорости

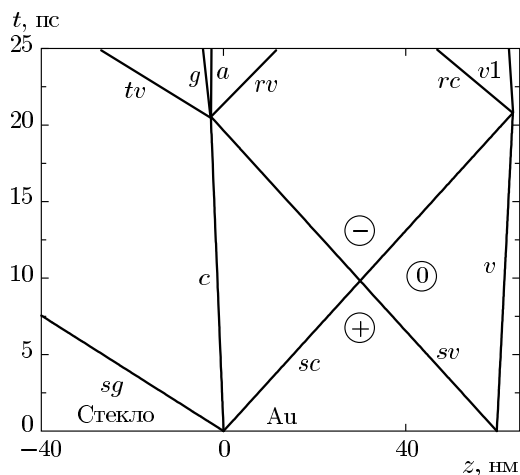


Рис. 10. Распространение двух встречных волн разрежения, sc и sv , по пленке золота. Волна sc бежит от контакта c , а cv — от границы с вакуумом v , $v1$. Передний фронт волны сжатия в стекле обозначен sg

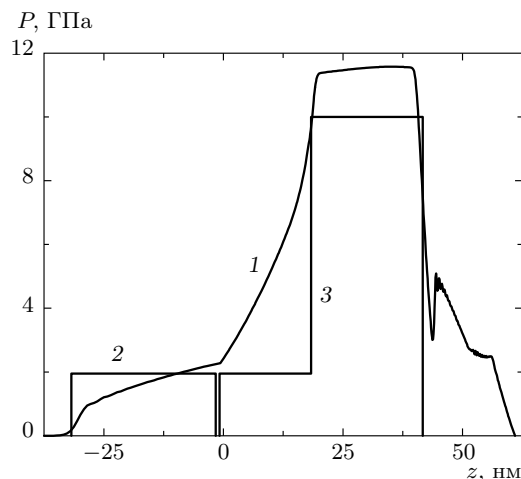


Рис. 11. Сравнение численного (кривая 1) и линейного аналитического (ломаные 2 и 3) решений. Момент времени $t = 6$ пс; $F_{abs} = 40$ мДж/см², $d_f = 60$ нм, $\tau_L = 100$ фс

звука от амплитуды (нелинейный эффект).

Обнаружение пика, провала и его следа в волне разрежения, бегущей на рис. 6, 8 налево, произошло благодаря тому, что система (3)–(6) решается численно с мелким шагом 0.02–0.1 нм по пространству. Ширина провала составляет 1–2 нм. Она определяется масштабом порядка $c_s \tau_L$. Вряд ли можно будет уловить такой тонкий эффект в молекулярной динамике, поскольку при $\tau_L = 0.1$ пс ширина провала сравнима с межатомным расстоянием.

Кроме рассмотренной выше волны разрежения, распространяющейся от вакуумной границы, имеется волна разрежения, которая распространяется по пленке от контакта стекло–золото. В золото идет волна разрежения, а в стекло — волна сжатия. Схема движения волн представлена на z, t -диаграмме на рис. 10. Акустический импеданс стекла $Z_g = 0.9 \cdot 10^6$ г/см²·с меньше, чем акустический импеданс золота $Z_a = 5.9 \cdot 10^6$ г/см²·с. Аналитическое акустическое решение в линейном приближении приведено в работе [72]. Анализируемое здесь численное решение значительно более содержательно, чем аналитическое решение. Сравнение решений показано на рис. 11. В гидродинамических 2Т-расчетах вместо стекла выбран алюминий, поскольку он имеет привычное нам УРС и близок по плотности и скорости звука к стеклам, но акустический импеданс алюминия $Z = 1.4 \cdot 10^6$ г/см²·с в полтора раза больше. Это обстоятельство (переход к алюминию) увеличивает скорость центра масс v_{cm} в 1.4 раза и умень-

шает скорость контакта на 8%. Аналитическое решение, приведенное на рис. 11, получено по формулам распада разрыва в сторону вакуума и в сторону стекла. Принято, что в случае с $F_{abs} = 40$ мДж/см² УКЛИ мгновенно создает однородное по пленке давление $P_o = 10$ ГПа; за P_o принято среднее по времени давление с рис. 9. При этом пренебрегается теплопроводным выравниванием температуры T_e по пленке (ср. с рис. 3), а также изменением полного давления из-за передачи энергии в ионную подсистему и разницы в электронных и ионных параметрах Грюнайзена (см. рис. 9).

В этих предположениях аналитическое решение состоит из набора двух постоянных давлений, показанных на рис. 11. С течением времени меняются положения и значения постоянных давлений. Это происходит согласно диаграмме на рис. 10. Представим вкратце аналитическое решение, чтобы понимать качественные особенности численного решения. На временном интервале $0 < t < t_s/2$ ($t_s = d_f/c_s \approx 20$ пс, $c_s = 3.05$ км/с — скорость звука в золоте в нормальных условиях) имеем значения трех давлений слева направо в аналитическом решении: $p_c = P_o Z/(Z + Z_a)$, P_o , 0 (см. три плато на рис. 11). Значения давлений P_o на среднем отрезке и $P = 0$ на правом отрезке выделены значками «плюс» и «0» на рис. 10. Границы прямоугольников по давлению (есть еще скачок плотности на контакте) движутся со скоростью звука в соответствующей среде. Скорость контакта $u_c = P_o/(Z + Z_a)$, скорость

границы с вакуумом равна P_o/Z_a .

На временном интервале $t_s/2 < t < t_s$ имеем следующие значения трех давлений: p_c ,

$$P_{neg} = -P_o + p_c = -P_o Z_a / (Z + Z_a) \quad (10)$$

и 0. Давления на втором и третьем отрезках выделены значками «минус» и «0» на рис. 10. Видим, что в треугольной области, помеченной значком минус на рис. 10, возникают большие растягивающие напряжения (отрицательное давление). С течением времени слой растяжения (значок «минус») расширяется. Расширение в сторону контакта продолжается до момента выхода звуковой волны sv на рис. 10 на границу пленки c . Координаты z, t точки пересечения траекторий sv и c на рис. 10 следующие:

$$\frac{z_{sp}}{d_f} = - \left[\frac{K}{P_o} \left(1 + \frac{Z}{Z_a} \right) - 1 \right]^{-1},$$

$$t_{sp} = \frac{t_s}{1 - (P_o/K)/(1 + Z/Z_a)} \approx t_s. \quad (11)$$

Видим, что в линейном режиме $P_o \ll K$ смещение z_{sp} мало по сравнению с толщиной пленки d_f (см. рис. 10). Мерой нелинейности является отношение давления к объемному модулю золота P_o/K , а мерой симметрии расширения пленки — отношение импедансов. При симметричном расширении, когда обе границы пленки — это границы с вакуумом, имеем $Z/Z_a = 0$ и $v_{cm} = 0$.

Подчеркнем, что случаю неподвижного контакта соответствует бесконечно большой импеданс стекла, соответственно $Z/Z_a = \infty$. В такой постановке задача рассматривалась в работах [1, 2]. В этом случае качественно меняется характер динамического взаимодействия пленки с контактом. Вместо волны разрежения sc , начинающей в момент $t/t_s \approx 0$ свое распространение в стекло влево и в золото вправо (см. рис. 10), вещество у контакта остается в положении покоя с неизменной плотностью до прихода на контакт волны разрежения sv , испущенной границей с вакуумом в момент $t \approx 0$. Это сказывается на течении в целом, например, скорость границы с вакуумом на рис. 9 не начинает уменьшаться в момент $t \approx t_s$, поскольку уменьшение связано с приходом волны разрежения sc от контакта. Скорость v_{cm} центра масс пленки после отделения пленки от стекла оказывается намного больше значений, приведенных в таблице. Это связано с отсутствием расширения в сторону стекла.

Вернемся к случаю $Z \ll Z_a$, который реализуется в опытах. При $t = t_{sp} + 0$ волна растяжения

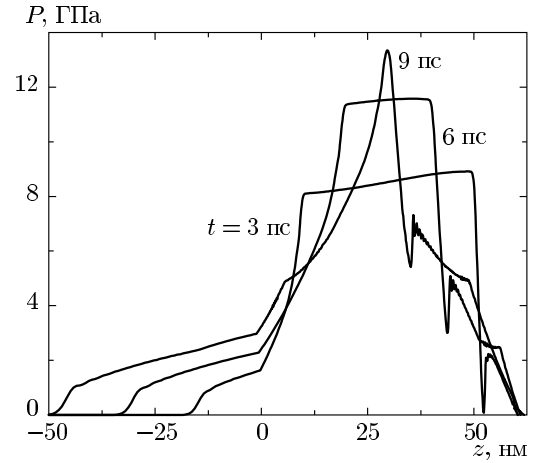


Рис. 12. Медленное расширение пленки и распространение волны сжатия в стекло. Трансформация левой sc и правой sv волн разрежения до их встречи примерно посередине пленки. $F_{abs} = 40$ мДж/см²

прибывает на границу c , и начинается растяжение контакта между пленкой и подложкой. Если пренебречь адгезией золота к стеклу ($P_{coh} = 0$), то отделение пленки от подложки происходит в момент t_{sp} (момент откола). На рис. 10 после откола вместо контакта c появляются две расходящиеся траектории, g и a . При этом профиль гидродинамического течения разбивается на пять участков: 1) $sg-tv$, давление равно p_c , tv — прошедшая волна, образовавшаяся в результате преломления волны разрежения sv на скачке импеданса на контакте c ; 2) $tv-g$, давление равно нулю; 3) $a-rv$, давление равно нулю; 4) $rv-rc$, давление отрицательное P_{neg} (10); 5) $rc-v1$, давление равно нулю.

Вернемся к описанию численного решения. Волны разрежения sc и sv на рис. 10 встречаются в момент времени $t \approx t_s/2 \approx 10$ пс в середине пленки. Со встречей волн разрежения sc и sv связано начало резкого падения давления (см. рис. 9). После встречи с волной sv волна разрежения sc продолжает движение к границе с вакуумом v ($v1$ на рис. 10). Волна sc достигает вакуумной границы в момент времени $t \approx t_s$. Этот момент времени разделяет участки v и $v1$ траектории границы с вакуумом, на которых скорость границы имеет разные знаки. Вблизи момента $t_s \approx 20$ пс начинается уменьшение скорости границы с вакуумом (см. рис. 9). Примерно одновременно при $t \approx t_s$ волна разрежения sv , бегущая от вакуумной границы, достигает контакта (см. рис. 10).

Эволюция профилей до встречи волн sc и sv

проиллюстрирована на рис. 12. Ситуация соответствует простому развитию распада скачка давления между золотом, находящимся под давлением, и стеклом, давление в котором равно нулю. Передача энергии в ионы объемным источником $\alpha(T_e - T_i)$ в уравнении (6) поднимает полное давление P (см. рис. 9) из-за разницы параметров Грюнайзена. Электрон-ионная релаксация продолжается примерно 5–15 пс (см. рис. 5) по энергии и около 35 пс по температуре (см. рис. 4). Повышение давления P со временем существенно изменяет численное решение по сравнению с аналитическим (см. рис. 11). В областях, где находятся плато справа и слева на аналитическом решении, имеем растущие по оси z распределения P . Рост P в пространстве в направлении к слою высокого давления внутри золотой пленки вызван ростом P во времени в слое высокого давления. Излом градиента P на контакте c связан со скачком плотности на контакте. Ускорения частиц слева и справа от контакта одинаковы, а плотности разные: отношение градиентов P равно отношению плотностей, т. е. в золоте градиент круче.

Рассмотрим взаимодействие волны sv с контактом c . В линейной акустике взаимодействие мгновенно и в момент $t_{sp} \approx 20$ пс (11) приводит к отколу. В реальной ситуации откол происходит позже; например, при $F_{abs} = 40$ мДж/см² имеем $t_{spall} = 35$ пс (см. таблицу). Это вызвано размытостью фронта волны и наличием квазиплато с ненулевым давлением (см. рис. 8, на котором фронт волны отмечен цифрами 1 для трех моментов времени, а квазиплато — цифрами 3). В линейной акустике отражение $sv \rightarrow c$ приводит к появлению прошедшей в стекло волны tv , разрыва с берегами g и a , отраженной волны rv (см. рис. 10). Волна sv имеет две важные характеристики. Это бегущая впереди характеристика sv и характеристика на изломе между фронтом и квазиплато (см. рис. 8). Характеристика на изломе отмечена цифрой 2 на рис. 8.

На рис. 13 проиллюстрировано прохождение волны sv через контакт c в случае $F_{abs} = 40$ мДж/см². Положения контакта c в моменты времени 19, 25, 30, 35.3 пс отмечены четырьмя кружками. В момент 19 пс правая волна разрежения (см. рис. 12) подходит к контакту. В этот момент характеристики sv и 2 этой волны находятся правее контакта. Излом градиента ∇P все еще ускоряет контакт. Характеристики sv и 2 окаймляют крутой участок волны разрежения, бегущей справа налево от границы с вакуумом (см. рис. 12). Далее характеристика sv пересекает контакт и превращается в прошедшую характеристику tv (см. рис. 13). В момент 25 пс харак-

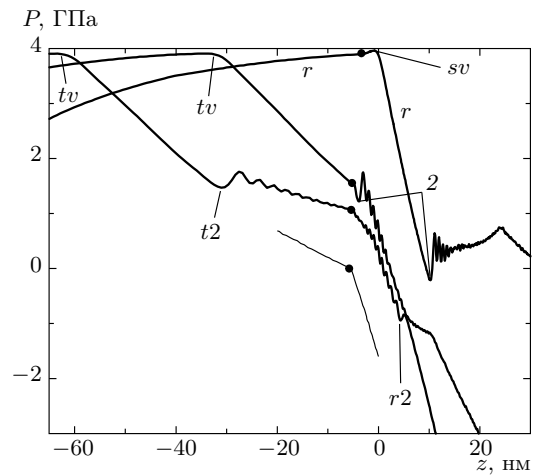


Рис. 13. Прохождение через контакт стекло–золото крутого участка $sv-2$ и квазиплато волны разрежения, идущей от границы с вакуумом. Показаны четыре профиля (справа налево), относящиеся к моментам времени $t = 19, 25, 30, 35.3$ пс. Чтобы не загромождать рисунок, от профиля 35.3 оставлен только кусок возле контакта. В момент 35.3 пс давление на контакте снижается до нуля. После этого начинается медленное расхождение границ стекла и золота

теристика 2 вплотную приближается к контакту. На профиле, соответствующем 30 пс, отмечены особенности, связанные с прошедшей характеристикой $t2$ и отраженной характеристикой $r2$. Характеристики $t2$ и $r2$ порождены характеристикой 2. При прохождении крутого участка $sv-2$ через контакт давление на нем быстро снижается. Поэтому ускорение контакта уступает место торможению контакта. Соответственно, градиент ∇P меняет знак. Но по-прежнему, в золоте абсолютное значение градиента больше, поскольку золото плотнее стекла.

Вычислим скорость v_{cm} центра масс пленки после ее откола от стекла. До воздействия УКЛИ импульс системы пленка + стекло равен нулю. Если пленка оторвалась от стекла, то суммарный импульс по-прежнему равен нулю (импульсом поглощенных фотонов пренебрегаем). Но импульс пленки

$$i = \int_{z^0=0}^{z^0=60} \rho u dx$$

становится конечной величиной, равной

$$i = \int_{-\infty}^{t_{sp}} p_c(t) dt.$$

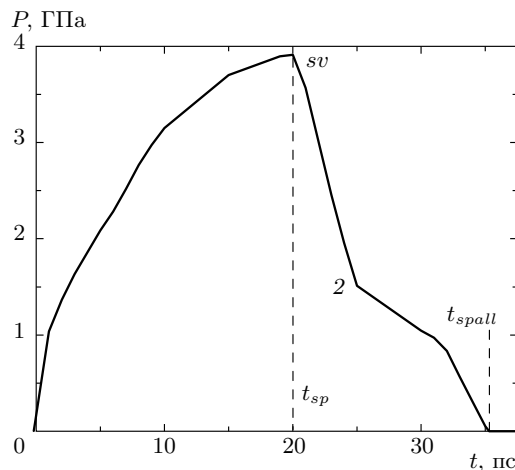


Рис. 14. Ускорение центра масс пленки за счет давления стекла на пленку через контакт стекло–золото. Сначала суммарное давление $P = P_e + P_i$ растет за счет электрон–ионной релаксации. Затем на контакт прибывает характеристика sv и давление $p_c(t)$ начинает быстро снижаться (см. также рис. 13). $F_{abs} = 40$ мДж/см²

Таким образом, скорость $v_{cm} = i/m$ определяется давлением на контакте; здесь

$$m = \int_{z^o=0}^{z^o=60} \rho dx = \rho^o d_f$$

— масса пленки.

Подынтегральная функция $p_c(t)$ приведена на рис. 14. В линейном случае импульс и скорость равны $p_c t_s$ и $v_{cm} = (Z_g/Z_a)u_c$, где $u_c = P_o/(Z_g + Z_a)$. В линейном случае функция $p_c(t)$ имеет прямоугольную форму. Эта функция равна нулю при $t > t_{sp} \approx t_s \approx 20$ пс (11), см. рис. 10 и 11. В реальной ситуации вместо прямоугольника на рис. 14 имеется растущая функция, значения которой начинают уменьшаться после того, как характеристика sv пересекла контакт. Пересечение происходит в момент $t_{sp} \approx 20$ пс. Между точками sv и 2 на рис. 14 давление $p_c(t)$ резко снижается. Этот участок соответствует прохождению крутого участка sv -2 волны разрежения, идущей со стороны вакуума (см. рис. 11–13). Затем на контакт прибывает квазиплато волны разрежения sv . Ему соответствует участок между точками 2 и t_{spall} . Значение t_{spall} для $F_{abs} = 40$ мДж/см² указано в таблице. В результате пленка набирает скорость v_{cm} , указанную в таблице. График на рис. 14 похож на зависимость скорости границы с вакуумом на рис. 9. Но на рис. 9 умень-

шение скорости определяет волна разрежения, бегущая от контакта, тогда как на рис. 14 спад давления задается волной разрежения, бегущей от вакуумной границы.

3. БЛИСТЕРИНГ ПЛЕНКИ НА ПОДЛОЖКЕ

3.1. Капиллярные эффекты

Приведенные выше вычисления, выполненные с помощью одномерного гидродинамического 2Т-кода, играют исключительную роль. Они поясняют механизм отскока металлической пленки от диэлектрической подложки и определяют начальное поле скоростей $v_{cm}(x, y) = v_{cm}[F_{abs}(x, y)]$. Код аппроксимирует систему уравнений (3)–(6). Важным параметром является диаметр R_L лазерного пучка. Именно с ним связаны неоднородные эффекты, которым посвящен настоящий раздел. В перпендикулярном оси пучка направлении распределение интенсивности убывает при удалении от оси пучка. В качестве функции, аппроксимирующей распределение интенсивности в перпендикулярной оси пучка плоскости, можно выбрать ту или иную куполообразную функцию, например функцию Гаусса. Распределение интенсивности по поверхности пленки пропорционально $\exp(-x^2/R_L^2)$ в случае пучка в форме полосы, $\exp(-r^2/R_L^2)$, $r^2 = x^2 + y^2$ в случае осесимметричного пучка, падающего на мишень по нормали к поверхности мишени, и $\exp[-(x^2 + y^2 \cos^2 \beta)/R_L^2]$ в случае осесимметричного пучка, падающего на мишень под углом β между нормалью и осью пучка.

Рассмотрим случай, когда пленка в пятне нагрева расплавилась в результате воздействия УКЛИ. Тогда на динамику полета пленки после ее отрыва от стекла влияет поверхностное натяжение горячего расплава. Коэффициент поверхностного натяжения является фиксированной (неизменяемой) функцией температуры жидкой фазы (рис. 15). То же (неизменяемость) относится к плотности золота ρ^o при нормальных условиях. Поэтому, казалось бы, характер влияния коэффициента σ на динамику определяется изменяемыми величинами R_L , d_f и v_o ; за v_o примем значение скорости центра масс пленки (см. таблицу) на оси лазерного пучка⁹⁾. Но радиус R_L выпадает из числа параметров. Капиллярный масштаб

⁹⁾ Как говорилось в разд. 1, процесс отрыва пленки, с одной стороны, и процесс полета пленки, с другой, могут рассматриваться раздельно. Действительно, временные масштабы этих двух процессов различаются на три порядка. Длительность первого процесса $t_s \sim 10$ пс, а длительность второго процесса $R_L/v_o \sim 10$ нс, т.е. $R_L/v_o \gg t_s$.

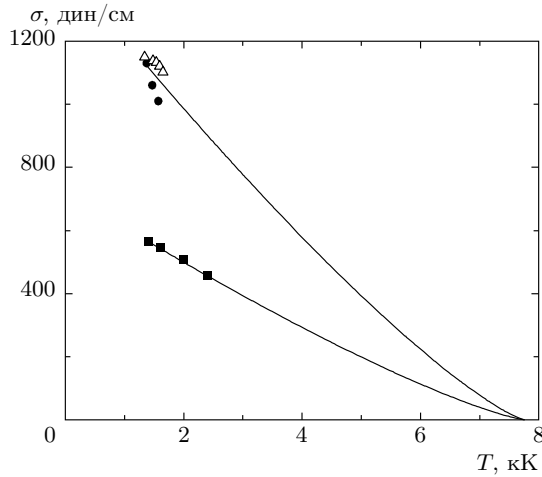


Рис. 15. Поверхностное натяжение σ на отрезке бинарности пар-жидкость, т.е. на кривой кипения (см. Приложение). Треугольники и черные кружки — экспериментальные данные из работ [73, 74]. Квадраты — значения σ согласно потенциалу золота [70], рассчитанному в приближении погруженного атома (embedded atom model, EAM). Кривые — аппроксимации вида $\sigma(T) = \sigma_3[(1 - T/T_c)/(1 - T_3/T_c)]^{1.25}$ [75], $T_3 = 1.337$ кК и $T_c = 7.756$ кК — температуры в тройной и критической точках, $\sigma_3 = \sigma(T_3)$. Известно, что EAM-потенциалы обычно заметно занижают коэффициент σ

скорости v_σ находится из сравнения поверхностной и кинетической энергий пленки:

$$2\sigma = \frac{\rho v_\sigma^2}{2} d_f, \quad v_\sigma^2 = \frac{4\sigma}{\rho d_f} \equiv \frac{4\sigma}{\mu_o}, \quad (12)$$

где μ_o [г/см²] = ρd_f — поверхностная плотность пленки до начала движения. В параметр v_σ радиус R_L не входит. В равенстве (12) перед σ стоит множитель 2, поскольку после отрыва от стекла пленка имеет две свободные поверхности. Таким образом, при пренебрежении теплопроводным охлаждением вдоль металлической пленки и заморозкой расплава единственный безразмерный параметр, регулирующий движение, это безразмерная скорость

$$\hat{V}_o = v_o/v_\sigma. \quad (13)$$

Если пренебречь разрывом пленки (пленка бесконечной растяжимости), то поверхностное натяжение всегда остановит и повернет назад к подложке движение отлетающей пленки даже при $\hat{V}_o \gg 1$ (13), когда на начальном этапе кинетическая энергия до-

минирует. Форма пленки на подложке показана выше на рис. 2. Действительно, поверхностная энергия неограниченно увеличивается по мере увеличения поверхности пленки, тогда как кинетическая энергия ограничена.

В чем заключается роль радиуса R_L , если в определении параметра (13) он не входит? При фиксированном значении $\hat{V}_o$ (13) процесс развития «вспучивания» (bumping), см. рис. 2, одинаков в безразмерных координатах

$$\hat{x} = \frac{x}{R_L}, \quad \hat{y} = \frac{y}{R_L}, \quad \hat{z} = \frac{z}{R_L}, \quad \hat{t} = \frac{t}{R_L/v_\sigma}, \quad (14)$$

т.е. при равных параметрах $\hat{V}_o$ и в равные моменты времени $\hat{t}$ размер вспучивания просто пропорционален величине R_L .

Запишем уравнения движения пленки в безразмерном виде:

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \hat{r}}{\partial \hat{t}^2} &= -C \frac{\partial \hat{z}}{\partial \hat{a}}, \quad \frac{\partial^2 \hat{z}}{\partial \hat{t}^2} = C \frac{\partial \hat{r}}{\partial \hat{a}}, \\ \hat{R} &= \frac{k^3}{\hat{z}'' \hat{r}' - \hat{r}'' \hat{z}'}, \quad k = \sqrt{\hat{r}'^2 + \hat{z}'^2}, \\ \hat{r}' &= \frac{\partial \hat{r}}{\partial \hat{a}}, \quad \hat{z}' = \frac{\partial \hat{z}}{\partial \hat{a}}, \quad C = \frac{1}{2} \left(\frac{\hat{r}}{\hat{a} \hat{R}} + \frac{\hat{z}'}{k \hat{a}} \right). \end{aligned} \quad (15)$$

Система из двух уравнений (15) соответствует осесимметричной геометрии. При этом ось z на рис. 2 является осью вращения, а r — цилиндрический радиус, т.е. расстояние до оси z , $\hat{r} = r/R_L$. Пленка считается бесконечно тонкой. Дуга пленки пробегается лагранжевой координатой a ; $\hat{a} = a/R_L$. Координата a задается как начальное значение радиуса r , на котором до начала движения находилась материальная частица пленки на подложке. До начала движения поверхность подложки — это плоскость $z = 0$.

В размерных переменных система (15) имеет вид

$$\frac{\partial^2 \xi}{\partial t^2} = -2 \frac{\sigma}{\mu_o} \frac{r}{a} \frac{ds}{da} (R_{rz}^{-1} + R_t^{-1}) \mathbf{n}, \quad (16)$$

где $\xi = \{r, z\}$,

$$R_{rz} = \frac{s'^3}{z'' r' - r'' z'}$$

— радиус кривизны кривой, которая при вращении вокруг оси z образует осесимметричную поверхность выпучивания пленки на рис. 2, $r' = \partial r / \partial a$. Данная плоская кривая находится в плоскости rz . Второй радиус кривизны в уравнении (16),

$$R_t = \frac{r}{\cos \alpha} = \frac{r s'}{z' t},$$

относится к плоской кривой, которая лежит в пересечении плоскости N и поверхности вращения, $\cos \alpha = dz/ds$; α — угол между осью z и касательной прямой к пленке. Эта касательная лежит в плоскости rz . Плоскость N проходит через вектор нормали $\mathbf{n}$ к поверхности пленки и перпендикуляр к плоскости rz . Радиус R_t равен расстоянию от точки на пленке до оси z вдоль нормали $\mathbf{n}$.

Член слева в уравнении (16) связан с силой инерции $(2\pi a da)\mu_o \dot{\xi}$ кольца с массой $(2\pi a da)\mu_o$, где $2\pi a da$ — площадь этого кольца на поверхности подложки до воздействия УКЛИ. Нормаль к точке с координатами r, z на поверхности пленки на рис. 2 направлена наружу, в сторону выпуклости пленки. Соответственно разность давлений, созданная поверхностным натяжением, направлена внутрь и тормозит пленку. Этому соответствует знак минус перед правой частью уравнения (16). Член справа получается из силы $(2\pi r ds)p$ капиллярного давления p на кольцо площадью $2\pi r ds$. Множитель $(1/\mu_o)(r/a)s'$ справа в уравнении (16) формируется из массы (без 2π) $\mu_o a da$ и площади (без 2π) $r ds$ кольца. Летящая пленка имеет две свободные поверхности, поэтому появляется множитель 2 в правой части уравнения (16).

В плоском случае система (15) принимает вид

$$\frac{\partial^2 \hat{x}}{\partial \hat{t}^2} = -\frac{1}{2\hat{R}_p} \frac{\partial \hat{z}}{\partial \hat{a}}, \quad \frac{\partial^2 \hat{z}}{\partial \hat{t}^2} = \frac{1}{2\hat{R}_p} \frac{\partial \hat{x}}{\partial \hat{a}}, \quad (17)$$

$$\hat{R}_p = \frac{k^3}{\hat{z}''\hat{x}' - \hat{x}''\hat{z}'}, \quad k = \sqrt{\hat{x}'^2 + \hat{z}'^2}, \quad \hat{x}' = \frac{\partial \hat{x}}{\partial \hat{a}}.$$

В плоской геометрии вспучивание имеет вид полосы вдоль оси y . Соответственно кривая $z(x, t)$ лежит в плоскости $y = \text{const}$. Вместо цилиндрического радиуса $r(a, t)$ в систему (17) входит координата $x(a, t)$.

3.2. Результаты интегрирования

Нелинейная система уравнений в частных производных (15) решалась численно с начальными и граничными условиями. Начальные условия имеют вид

$$\begin{aligned} r(a, t = -0) &= a, \quad z(a, t = -0) = 0, \\ \frac{\partial r(a, t = -0)}{\partial t} &= 0, \\ \frac{\partial z(a, t = -0)}{\partial t} &= \hat{V}_o v_\sigma \cos^2 \frac{\pi a}{2R_L}. \end{aligned} \quad (18)$$

Условия (18) равномерно распределяют материальные частицы по плоскости подложки на отрезке $0 < a < R_L$ и задают начальное распределение скорости $\partial z/\partial t$ по нормали к подложке. Как говорилось в

разд. 2, 3, можно пренебречь временами $t_s \sim 20$ пс, за которые пленка отделяется от подложки, по сравнению с временами $R_L/v_\sigma \sim 1$ [мкм]/100 [м/с] ~ 10 нс, за которые пленка перемещается на расстояния порядка R_L . Поэтому отсчет времени в условиях (18) ведется от момента $t = 0$. Задаче о воздействии УКЛИ подходят граничные условия

$$r(a = 0, t) = 0, \quad \partial z(a = 0, t)/\partial a = 0, \quad (19)$$

$$r(a = R_L, t) = R_L, \quad z(a = R_L, t) = 0, \quad (20)$$

которые соответствуют тому, что центральная лагранжева частица ($a = 0$) находится на оси z и кривизна пленки в вершине конечна (19). Кроме того, крайняя лагранжева частица ($a = R_L$) закреплена в точке $r = R_L, z = 0$ (20). Системы (15)–(17) четвертого порядка по времени и четвертого порядка по координате. Поэтому для их решения необходимо восемь начальных и граничных условий (18)–(20).

Системы (15)–(17) анализировались недавно в работе [72]. По сравнению с этой работой здесь будет представлена важная классификация решений в зависимости от определяющего параметра $\hat{V}_o$ (13); тогда как в работе [72] рассмотрено несколько отдельных случаев, в которых происходит «опрокидывание» решения и начинается зарождаться капля в вершине выпучивания. Будет исправлена допущенная в [72] неточность — формула для параметра C (15) должна содержать множитель $1/2$. Кроме того, будут добавлены новые молекулярно-динамические (МД) расчеты в плоской геометрии, соответствующей уравнениям (17). Главное, ниже впервые представлены результаты МД-моделирования в осесимметричной геометрии. Они позволили теоретически объяснить происхождение обнаруженного недавно эффекта образования обратной струи (см. рис. 7 в работе [28]).

При малых значениях $\hat{V}_o \ll 1$ (13) пленка поворачивается назад в сторону подложки после небольшого удаления от подложки. Поэтому капля в вершине купола вспучивания образоваться не успеет. Формирование капли и струи в вершине происходит при $\hat{V}_o = \hat{V}_{cr}$. Прежде чем привести значения $\hat{V}_{cr}$ для плоской и цилиндрической геометрий, проанализируем случай $\hat{V}_o > \hat{V}_{cr}$. Сравнение МД-расчета с решением системы (15) в этом случае представлено на рис. 16. Параметры расчета: осесимметричное лазерное воздействие; $\hat{V}_o = 2.60177$ (13); $R_L = 300$ нм; $v_o = 300$ м/с; $\mu_o = 1.64356 \cdot 10^{-5}$ г/см². До воздействия УКЛИ пленка ГЦК-кристалла золота имела толщину в 23 постоянных решетки 0.429434 нм

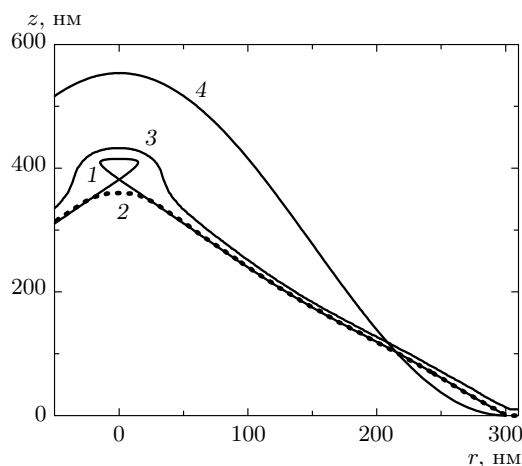


Рис. 16. Сравнение крупномасштабного (0.2 миллиарда частиц) МД-моделирования и результатов интегрирования системы (15): кривая 1 — в момент $t = 1.846$ нс, $\hat{t} = 0.70954 \approx 0.71$; кривые 2 и 3 — нижняя и верхняя границы пленки согласно МД-расчету. Параметры расчетов см. в тексте. Уровень $z = 0$ относится к поверхности подложки до воздействия УКЛИ. Для инерционной кривой $4 \sigma = 0$ (полет пленки по инерции), а остальные параметры такие же, как в расчете системы (15)

при нормальных условиях ($p = 0$) для нашего ЕАМ-потенциала. При МД-расчете внутри области, ограниченной кругом $r = 300$ нм и квадратом 620×620 нм², постоянно работает термостат с нулевой скоростью, который принудительно удерживает край купола на подложке. Область МД-расчетов покрывала квадрат 620×620 нм². В расчете использовалось $191832512 \approx 200 \cdot 10^6$ атомов. Коэффициент поверхностного натяжения 546 дин/см для системы (15) такой же, как в МД-расчете (см. Приложение и рис. 15). В МД-расчете расплав золота имеет температуру 1600 К и плотность 16.55 г/см³, при этом вещество находится на бинодали (см. Приложение). После плавления термостатом и до начала движения толщина пленки составляла 9.9 нм. В МД-расчете принимается, что вещество находится между верхней и нижней границами пленки (см. рис. 16).

Из сравнения МД-данных и данных, полученных численным интегрированием системы (15), следует, что они очень хорошо соответствуют друг другу даже после начала формирования капли в вершине (см. рис. 16). В системе (15) капле соответствует петелька в вершине. На рис. 16 показан достаточно поздний момент времени, к которому капиллярные силы уже существенно затормозили купол (ср.

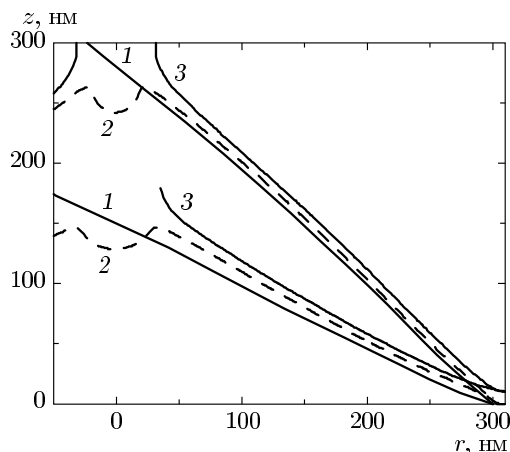


Рис. 17. Верхняя группа из трех кривых относится к $t = 2.86$ нс, а нижняя — к $t = 3.81$ нс. Имеются зоны центральной струи и контрструи. Пленка на показанные моменты времени прошла стадию остановки и движется назад, к подложке. Номера кривых и параметры задачи такие же, как в случае рис. 16. Выпуклость вниз в центральной зоне на нижней из кривых 2 соответствует зарождающейся контрструе

кривые 1 и 4). Удовлетворительное согласие между МД-моделированием и расчетом системы (15) сохраняется даже на больших временах, когда становится велика масса капли (рис. 17).

Речь идет о сравнении форм пленки (в МД-расчете и согласно (15)) вне центральной зоны, в которой располагаются струя (летит вверх) и контрструя (летит вниз). Вычисление (с помощью решения системы (15)) дает для массы капли величины 26 % и 40 % на моменты времени $t = 2.86$ нс и $t = 3.81$ нс. Этим двум моментам времени соответствуют кривые на рис. 17. Проценты показывают отношение массы капли к полной массе пленки внутри круга радиуса R_L , см. условие (20). Для определения массы капли согласно решению системы (15), находим точку a_{drop} , в которой функция $r(a, t)$ первый раз обращается в нуль при вариации лагранжевой координаты a от 1 до a_{drop} . В этой точке происходит самопересечение пленки на оси z . Пример самопересечения показан на рис. 16 в виде петельки в вершине конусообразного купола. Форма пленки задается параметрически функциями $r(a, t)$ и $z(a, t)$, которые являются решениями системы (15). В момент $t = 1.846$ нс, представленный на рис. 16, координата точки самопересечения равна $\hat{a}_{drop} = 0.2285391$, а масса капли-петельки, отнесенная к полной массе,

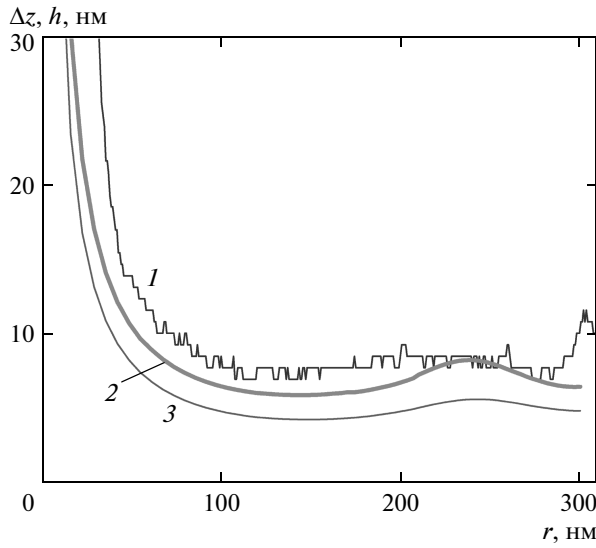


Рис. 18. Кривые $\Delta z = z_{high}(r, t) - z_{low}(r, t)$ дают разность высот верхней и нижней поверхностей вдоль оси z в момент $t = 2.86$ нс: кривая 1 — МД-расчет; 2 — система (15). Толщина пленки h (кривая 3) согласно (21). Параметры такие же, как для рис. 16

равна $\pi \hat{a}_{drop}^2 / \pi \hat{R}_L^2 = 0.228539^2 = 5.22\%$. Значение a_{drop} определяет координату, в которой кривые модели (15) на рис. 17 пересекают ось z .

До начала движения в результате воздействия УКЛИ пленка прилежала к оси z при значении $a = 0$. Лагранжева частица $a = 0$ является единственной частицей на оси z после начала движения и до момента t_{drop} , когда возникает самопересечение. В модели (15) в момент t_{drop} в вершине купола появляется зародыш капли. Далее этот зародыш развивается в струю и контрструю, как это следует из МД-моделирования. При $t > t_{drop}$ пленка покрывает отрезок от оси z до точки прикрепления $r = R_L$ за счет уменьшенного количества лагранжевых частиц a : $a_{drop} < a < R_L$. Таким образом, за счет раздувания купола при полете вверх и за счет ухода вещества в каплю имеет место растяжение пленки. Соответственно, толщина пленки уменьшается. Отметим, что в случае, показанном на рис. 17, раздувание купола сменяется движением назад к подложке. При этом аккумуляция вещества в капле действует в направлении уменьшения толщины пленки, а сокращение площади боковой поверхности купола действует в обратном направлении.

Распределение массы по радиусу r показано на рис. 18. В модели (15) имеем

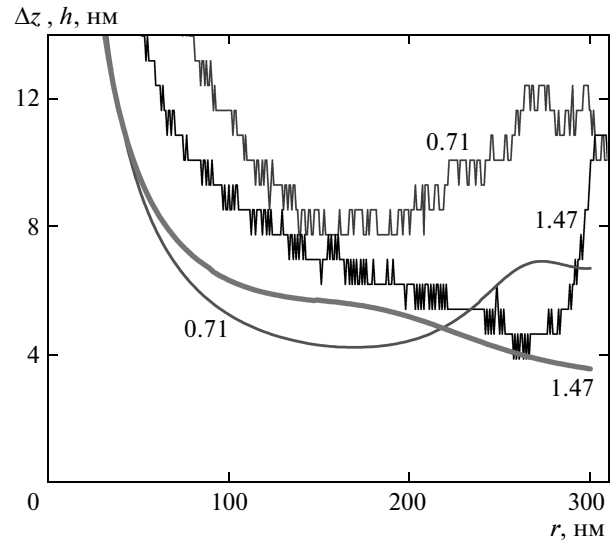


Рис. 19. Разность Δz (верхние две ступенчатые кривые) из МД-расчетов и толщины пленок h согласно (21). Параметры такие же, как для рис. 16. Разности Δz и толщины h даны на два момента времени: $\hat{t} = 0.70954$ ($t = 1.846$ нс) и $\hat{t} = 1.46594$ ($t = 3.81403$ нс). Цифры около кривых дают округленные значения безразмерного времени $\hat{t}$ (14). Зависимости $\Delta z(r)$ и $h(r)$ постепенно сближаются (ср. пару Δz и h в моменты $t = 1.8$ нс и $t = 3.8$ нс). Это происходит из-за увеличения угла раскрытия конуса по мере приближения пленки к подложке (см. рис. 16 и 17)

$$h = \frac{\mu_o}{\rho} \frac{a/r(a, t)}{\partial s / \partial a}, \quad (21)$$

$$\Delta z = \frac{\mu_o}{\rho} \frac{a/r(a, t)}{\partial r / \partial a},$$

где h — толщина пленки, равная расстоянию между двумя точками, которые лежат на векторе нормали к поверхности пленки и принадлежат одна верхней, а другая нижней границам пленки, Δz — разность высот $z_{high}(r, t) - z_{low}(r, t)$, μ_o — масса на единицу площади пленки до воздействия УКЛИ, ρ — плотность золота в пленке, при температуре расплава 1.6 кК эта плотность равна 16.55 г/см³. Приведенные формулы следуют из сохранения массы $2\pi a da \mu_o = 2\pi r ds \rho h$. Толщина пленки резко возрастает в центральной зоне (см. рис. 18), где происходит постепенное превращение округлой капли (см. рис. 16) в вытянутое по оси z образование в виде струи и контрструи.

Процесс изменения толщины пленки со временем

проиллюстрирован на рис. 19. Как видим, толщина растет к оси купола $r = 0$. Купол принимает конусообразный вид (см. рис. 16 и 17). Высота конуса (без учета струи) снижается на временах 2–4 нс с 0.4 до 0.15 мкм. С течением времени вещество пленки перетекает в центральную зону — струя в этой зоне действует как сток массы для остальной части пленки. Перетекание обусловлено знаком торможения — вниз к подложке и к оси z . Как говорилось выше, на стадии движения купола назад к подложке, сток массы действует в сторону уменьшения толщины пленки, а сокращение площади купола — в обратную сторону¹⁰. На отрезке эволюции, показанном на рис. 19, масса центрального образования увеличивается с 5 до 40 % (см. выше). Площадь конуса при этом снижается примерно с 0.5 мкм² до 0.3 мкм².

Видимо, уменьшение площади купола несколько компенсирует сток вещества в приосевую зону. Поэтому за 2 нс, с $t = 1.846$ нс до $t = 3.81$ нс, толщина пленки изменилась мало. Зато по сравнению с начальным значением $h \approx 10$ нм толщина уменьшилась примерно вдвое. К моменту времени $t = 3.81$ нс минимум толщины сместился к подножию конуса (см. рис. 19). Возможно, это означает, что если пленка не кристаллизуется, то кольцо отрыва будет находиться ближе к подложке (ср. с [33]). Жидкий купол, отрываясь от мишени, в полете постепенно превращается из образования, имеющего сложную форму, в шаровидную каплю [72]. Это происходит по мере диссипации капиллярных осцилляций. В момент $t = 3.81$ нс, показанный на рис. 19, минимальная толщина пленки примерно равна 4 нм. Для разрыва жидкой пленки необходимо, чтобы ее толщина уменьшилась до величины примерно 1 нм (3–4 межатомных расстояния). Заключение о разрыве пленки при ее истончении до 3–4 межатомных расстояний следует из расчетов нановспучивания в плоской геометрии [72] и расчетов вспенивания и разрушения пены расплавленных металлов [5, 55]. Капиллярные эффекты, процессы нуклеации и развития пены при широком пятне нагрева (R_L — десятки микрометров) [5, 55, 76–78] и при рассматриваемой здесь острой фокусировке ($R_L \sim 1$ мкм) имеют много общего. Вспенивание расплава и заморозка пены предлагаются в работах [5, 55, 76–78] в качестве механизма формирования хаотических структур, наблюдаемых в экспериментах [79–81].

¹⁰ Это так, пока не началось замерзание пленки купола. Вопрос теплоотвода и рекристаллизации требует отдельного обсуждения.

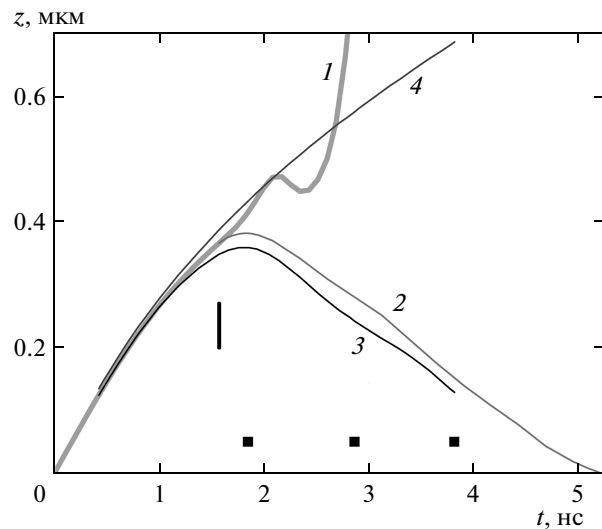


Рис. 20. Эволюция центральной зоны, заключающаяся в формировании и развитии мощного приосевого образования. При зарождении это образование имеет вид капельки в вершине (см. рис. 16). Далее капелька трансформируется в струю и контрструю. С течением времени струя высоко поднимается над поверхностью купола. В момент $t = 3.8$ нс скорость струи $\partial z_{high}/\partial t = 120$ м/с. Напомним, $v_o = 300$ м/с (см. параметры в описании рис. 16). Кривые 1 — $z(a = 0, t)$; 2 — $z_{drop}(t)$; 3 — $z_{low}(t)$; 4 — $z_{high}(t)$. Квадраты соответствуют моментам времени, относящимся к рис. 16–19

3.3. Струя и контрструя

На рис. 20 представлена кинематика подъема вверх и опускания вниз к подложке центральной зоны купола. Этот рисунок иллюстрирует рост струи и зарождение контрструи. Кривая $z(0, t)$ показывает, как в модели (15) удаляется от подложки материальная частица, которая до воздействия УКЛИ находилась в центре пятна нагрева. Вскоре после образования самопересечения кривой, отображающей бесконечно тонкую пленку на плоскости rz , траектория $z(0, t)$ теряет физический смысл, поскольку в этой зоне нельзя пренебрегать толщиной пленки. Кривая $z_{drop}(t)$ на рис. 20 соответствует траектории точки самопересечения $a_{drop}(t)$, $r[a_{drop}(t), t] = 0$, $z_{drop}(t) = z[a_{drop}(t), t]$. В этой точке вспученная в виде купола тонкая пленка пересекает ось z . Из рис. 16 ясна разница между точками $z(0, t)$ и $z_{drop}(t)$ — они соответствуют верхней и нижней точкам петельки. Мгновенное положение дуги пленки задается решением $r(a, t), z(a, t)$ системы (15). Здесь параметр a

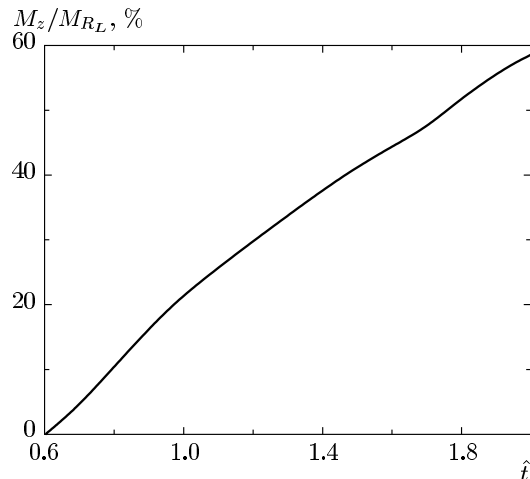


Рис. 21. Рост доли массы в процентах. Речь идет о массе $M_z(t)$, которая в модели (15) к моменту времени t прошла через точку самопересечения в приосевую зону. Величина M_z отнесена к массе пленки M_{R_L} в круге радиуса R_L . На достаточно поздних временах M_z — это, в основном, масса струи, возвышающейся над куполом. В модели (15) зарождение приосевого образования происходит в момент начала самопересечения. Этот момент отмечен вертикальным отрезком на рис. 20. До начала пересечения масса $M_z(t)$ равна нулю. Параметры такие же, как для рис. 16

пробегают дугу. Точка пересечения дуги $r(a, t), z(a, t)$ с осью z показана на рис. 16 и 17. На рис. 20 начало кривой $z_{drop}(t)$ отмечено вертикальным отрезком. Это начало мы называем моментом зарождения капли в вершине купола. Координаты точки зарождения есть $t_{drop} = 1.571$ нс и $z_{drop} = 0.3663$ мкм.

Сравним результаты МД-моделирования с решением системы (15). При МД-расчете зарождение капли происходит постепенно. Этому соответствует увеличение расстояния по оси z между кривыми 3 и 4 на рис. 20. Стадия зарождения и дальнейшая эволюция при МД-расчете согласуются с решением системы (15) — кривые 1 и 2 на рис. 20. Как говорилось, если нет разрыва пленки, то капиллярные силы всегда остановят рост купола. При выбранных параметрах задачи максимальное удаление купола 0.37 мкм достигается в момент 1.8 нс в точке поворота движения назад к подложке. Три квадратики на рис. 20 отмечены моменты времени, относящиеся к рис. 16–19.

На рис. 21 показано, как растет количество золота в центральной зоне. Конечной точкой графика является момент $t \approx 5.2$ нс, в который точка само-

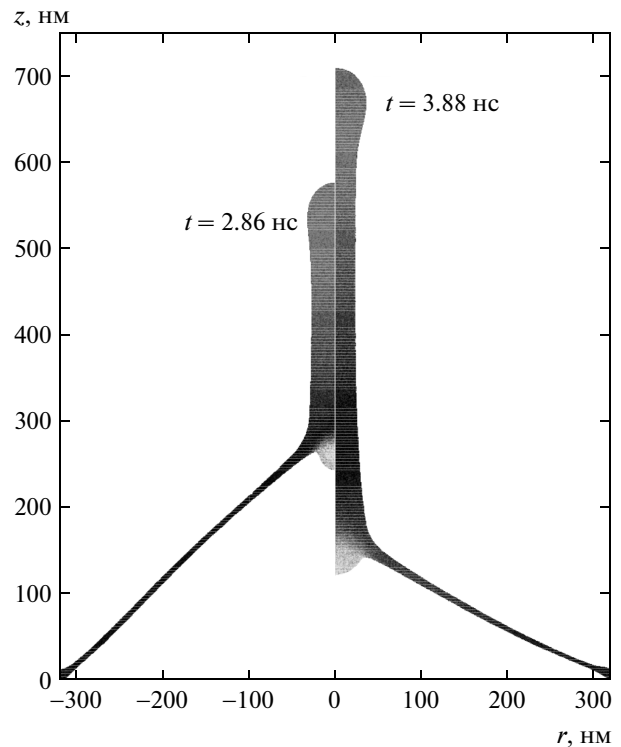


Рис. 22. Морфология и эволюция приосевого образования в осесимметричном случае на поздних стадиях МД-моделирования. Показаны распределения вертикальной скорости в тонком сечении, проходящем через ось вращения струи ($r = 0$). Правая половина относится к моменту $t = 3.88$ нс, левая — $t = 2.86$ нс. Верхняя точка струи справа (слева) движется вверх со скоростью +131 м/с (+139 м/с), а нижняя точка движется вниз со скоростью –164 м/с (–134 м/с)

пересечения на рис. 20 приходит на подложку. По горизонтальной оси на рис. 21 отложено безразмерное время $\hat{t}$. Размерное время равно $t = 2.60177\hat{t}$ нс. Вещество, перешедшее из пленки в центральную зону, в основном расходится на формирование мощной струи (рис. 22). Диаметр примерно цилиндрической струи меняется медленно по сравнению с длиной струи. Он составляет примерно 50 нм, т. е. около 10% от диаметра круга, в котором пленка оторвалась от подложки.

На приведенном выше рис. 17 линия 3 внешней границы купола в центральной зоне убрана. Это сделано для того, чтобы рис. 17 был ясным. Дело в том, что рис. 17 посвящен анализу конусовидного купола. Приосевое образование по всей его высоте показано на рис. 20 и 22. Рассмотрим приосевую

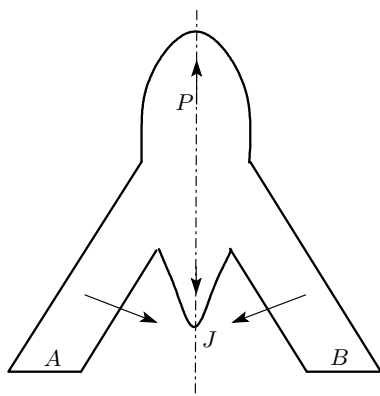


Рис. 23. Столкновение пластин A и B (плоская геометрия) или схождение стенок конуса A , B к оси конуса (осесимметричный случай). Из-за столкновения возникают кумулятивная струя J и пест P . Стрелки показывают направления скоростей пластин в лабораторной системе координат

структуру. В верхней части струи на рис. 22 располагается капля. Рост суммарной длины образования $z_{high}(x=0, t) - z_{low}(x=0, t)$ приведен на рис. 20. На начальной стадии ($t \approx 1.6$ нс) стекания вещества на ось z приосевое образование имеет вид капли в вершине купола (см. рис. 16, 20). На последующей стадии длина струи растет гораздо быстрее, чем длина контрструи. Контрструя представляет собой бугорок на внутренней поверхности купола на рис. 17, 22.

В технике хорошо известны кумулятивные явления [82, 83]. Косое столкновение плоских пластин или схождение конуса к оси в несжимаемой жидкости приводит к появлению кумулятивной струи (рис. 23). Схожим образом обстоит дело и в нашей задаче. Вершина контрструи имеет значительную скорость $v_{aj} = 120$ м/с, которая направлена вниз. Скорость v_{sur} вещества в пленке купола недалеко от оси z направлена в основном горизонтально в сторону оси; вертикальная составляющая скорости этих частиц вещества мала. Из-за того что пленка расположена под углом к оси z , а скорость v_{sur} пленки направлена к оси, точка пересечения образующих конусообразного купола движется вниз. Оказывается, что скорость перемещения точки пересечения образующих примерно равна скорости вершины контрструи. Поэтому, несмотря на значительную скорость v_{aj} вершины контрструи, контрструя развивается медленно (ср. с рис. 7 в работе [28]). Возможно, более длинная контрструя образуется, если начнется замерзание купола и снизится скорость v_{sur} . Тем

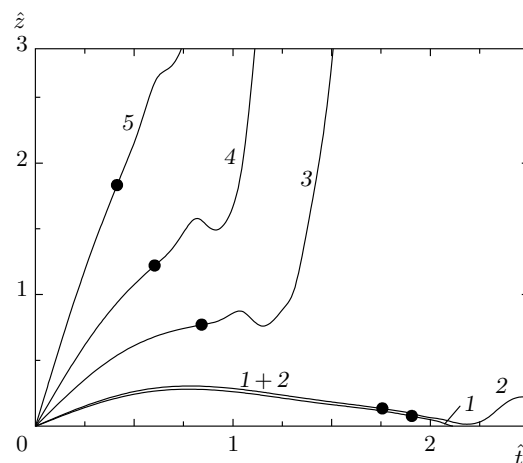


Рис. 24. Модификация решений при вариации отношения кинетической и капиллярной энергий, см. уравнения (12), (13). Показаны зависимости $z(0, t; \hat{V}_0)$ от времени при значениях $\hat{V}_0 = 0.6$ (кривая 1), 0.65 (2), 1.5 (3), 2.6 (4), 5 (5). Чем больше параметр $\hat{V}_0$, тем больше кинетическая энергия и тем быстрее движется пленка. В таблице приводятся значения $\hat{V}_0$, относящиеся к соответствующим кривым. Случай $\hat{V}_0 = 2.60177$ подробно разобран выше (см. рис. 20 и 16–22). Маркеры указывают точку образования капли $\hat{t}_{drop}$, $\hat{z}_{drop}$ в вершине

не менее, из рис. 17 и 22 следует, что указание на существование контрструи несомненно имеется.

3.4. Классификация решений

Классификатором решений является безразмерная начальная скорость $\hat{V}_0$ (13). Имеются три типа решений, соответствующие малым, средним и большим значениям: $\hat{V}_0 \ll 1$, $\hat{V}_0 \sim 1$ и $\hat{V}_0 \gg 1$. Рассмотрим их по порядку. При малых значениях скорости (13), оторвавшаяся от подложки пленка поднимается на небольшую высоту $z \ll R_L$, $\hat{z} \ll 1$, затем происходит поворот назад, и в момент t_{bck} пленка возвращается на подложку (см. рис. 24) с отходом и возвращением осевой точки купола $z(a=0, t)$ на плоскость $z=0$ при $\hat{V}_0 = 0.6$. При малых амплитудах $\hat{V}_0$ пленка, натянутая на окружность радиуса R_L , могла бы совершать капиллярные осцилляции, если бы не было подложки. Время t_{bck} удара пленки о подложку примерно равно половине периода колебания на низшей моде. На рис. 24 показаны зависимости $z(0, t; \hat{V}_0)$ при разных значениях скорости $\hat{V}_0$ (13). Даже при малых значениях $\hat{V}_0 \ll 1$ график $z(t)$ отличается от синусоиды, поскольку пропорци-

ональная квадрату косинуса функция (18), задающая начальное распределение скорости $\dot{z}(a, t = -0)$, не является собственной модой задачи о колебаниях пленки на круговом контуре. Максимальный подъем пленки над подложкой достигается в момент $t_{max} \approx t_{bck}/2$, примерно равный четверти периода. В безразмерных координатах $t/(R_L/v_\sigma)$ имеем $\hat{t}_{max} \approx 1$.

Ограничение $\hat{z} \ll 1$ относится к линейной по амплитуде возмущения теории. Представим линейный анализ. Это позволит точно вычислить указанные выше времена достижения максимума, $\hat{t}_{max}$, и удара пленки о подложку, t_{bck} , в пределе малых амплитуд $\hat{V}_o \ll 1$. Будет видно, что данные времена выходят на постоянные значения в пределе $\hat{V}_o \rightarrow 0$. Кроме того, польза от линейного решения следующая. Пленка начинает свое движение с плоскости $z = 0$, когда выполняется условие $z \ll 1$. Поэтому линейное решение описывает начальный участок эволюции при произвольных значениях $\hat{V}_o$ (13). Длительность этого участка ограничена величиной, составляющей малую долю от времени $1/\hat{V}_o$; в размерных переменных это время равно R_L/v_σ .

Вычислим период малых капиллярных колебаний пленки, натянутой на окружность радиуса R_L . Линеаризуем систему (15) возле невозмущенного состояния: $\hat{r} = \hat{a} + \delta r$, $|\delta r| \ll 1$, $|\hat{z}| \ll 1$. Имеем

$$k \equiv \frac{ds}{da} = 1, \quad \hat{R} = \frac{1}{\partial^2 \hat{z} / \partial \hat{a}^2}, \quad C = \frac{1}{2} \left(\hat{z}'' + \frac{\hat{z}'}{\hat{a}} \right),$$

где $\hat{z}' = \partial \hat{z} / \partial \hat{a}$. Безразмерные переменные были введены выше (14). Подставляя эти формулы в систему (15), находим, что поправка δr является поправкой второго порядка малости, т. е. в линейном приближении равна нулю. Видим, что в первом приближении материальные частицы пленки совершают колебания, двигаясь строго по нормали (в линейной аппроксимации). Уравнение для $\partial^2 r / \partial t^2$ выпадает из системы (15); функцию $r(a, t)$ и лагранжеву координату a можно заменить на горизонтальную координату — цилиндрический радиус r . Линеаризованное уравнение для $\partial^2 z / \partial t^2$ имеет вид

$$\hat{z}'' + \frac{\hat{z}'}{\hat{r}} - 2 \frac{\partial^2 \hat{z}}{\partial \hat{t}^2} = 0, \quad \hat{z}' = \frac{\partial \hat{z}}{\partial \hat{r}}. \quad (22)$$

Ищем решение в виде $\hat{z}(\hat{r}, \hat{t}) = \exp(-i\hat{\omega}\hat{t}) Z(\hat{r})$. Подставляя в уравнение (22), получаем, что функция Z подчиняется уравнению Бесселя нулевого порядка:

$$\hat{r} Z'' + Z' + 2\hat{\omega}^2 \hat{r} Z = 0. \quad (23)$$

Интересующее нас решение уравнения (23) имеет вид $Z \propto J_0(\sqrt{2}\hat{\omega}\hat{r})$. Второе независимое реше-

ние отбрасываем, поскольку оно имеет логарифмическую сингулярность на оси $r = 0$. Из граничного условия (20) при $\hat{r} = 1$ ($\hat{r} = r/R_L$ (14)) определяем спектр собственных мод:

$$\hat{\omega}_i = \frac{b_i}{\sqrt{2}}, \quad \hat{T}_i = \frac{2\pi}{\hat{\omega}_i}, \quad T_i = \frac{2\sqrt{2}\pi}{b_i} \frac{R_L}{v_\sigma}, \quad (24)$$

где b_i — корни уравнения $J_0(b_i) = 0$. Первые три значения равны $b_1 = 2.4048255$, $b_2 = 5.5200781$, $b_3 = 8.6537279$. Период основной моды $\hat{T}_1 = 3.69497$.

Разложим безразмерную начальную скорость (18) в ряд по функциям Бесселя:

$$\hat{V}_o \cos^2 \left(\frac{\pi \hat{r}}{2} \right) = \hat{V}_o \sum_{i=1}^{\infty} a_i J_0(b_i \hat{r}), \quad (25)$$

где коэффициенты разложения равны

$$a_i = \frac{\int \cos^2 \left(\frac{\pi \hat{r}}{2} \right) J_0(b_i \hat{r}) r dr}{\int J_0^2(b_i \hat{r}) r dr}.$$

Для нескольких первых значений коэффициентов (25) имеем $a_1 = 0.7793$, $a_2 = 0.26771$, $a_3 = -0.06562$. Решение задачи о полете вершины купола пленки дается сходящимся рядом:

$$\hat{z}(\hat{r}, \hat{t}) = \hat{V}_o \sum_{i=1}^{\infty} \frac{a_i}{\hat{\omega}_i} \sin(\hat{\omega}_i \hat{t}) J_0(b_i \hat{r}).$$

Используя этот ряд, найдем времена t_{bck} , t_{max} и максимальное удаление пленки от подложки, $\hat{z}(\hat{r} = 0, \hat{t}_{max})$, в пределе $\hat{V}_o \rightarrow 0$. Значения t_{max} и t_{bck} определяют точку наивысшего подъема пленки и момент удара пленки о подложку (см. рис. 24, кривая $z(0, t; \hat{V}_o = 0.6)$). Указанные времена являются корнями уравнений

$$\hat{z}(\hat{r} = 0, \hat{t}_{bck}) = 0, \quad \hat{t}_{bck} = 1.94128,$$

$$\frac{\partial \hat{z}(\hat{r} = 0, \hat{t}_{max})}{\partial \hat{t}} = 0, \quad \hat{t}_{max} = 0.736047. \quad (26)$$

$$\hat{z}(\hat{r} = 0, \hat{t}_{max} = 0.736047) = 0.463843 \hat{V}_o.$$

Начальная скорость $\partial \hat{z}(\hat{a}, \hat{t} = 0) / \partial \hat{t} = \hat{V}_o \cos^2(\pi \hat{a}/2)$ (18) представляет собой смесь мод. Из-за этого время $\hat{t}_{max} = 0.736$ не равно половине времени возвращения на подложку $\hat{t}_{bck}/2 = 0.97$, а время возвращения $\hat{t}_{bck} = 1.94$ не равно половине периода низшей моды $\hat{T}_1/2 = 1.85$.

Сравнение линейного решения с решением полной системы (15) показано на рис. 25. Заметный на

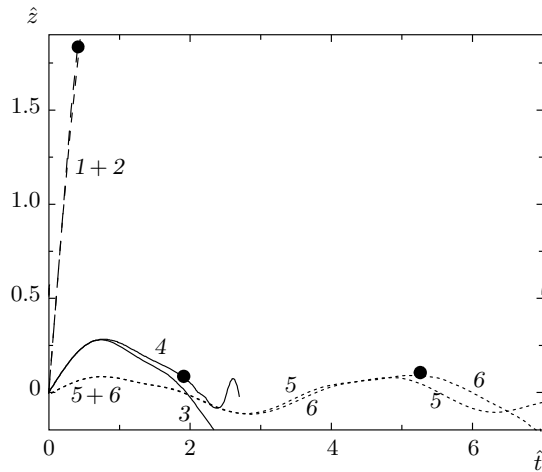


Рис. 25. Сопоставление линейного (кривые 1, 3, 5) и нелинейного (кривые 2, 4, 6) решений системы (15) при $\hat{V}_o = 5$ (1, 2), 0.6 (3, 4), 0.2 (5, 6). Образование капли в вершине означает, что нелинейные поправки стали существенными. Как и на рис. 24, черные кружки (t_{drop} , z_{drop}) относятся к моменту появления капли и к позиции, в которой она находится

глаз отход нелинейного решения от линейного начинается после образования капли. Капля образуется в точках (t_{drop}, z_{drop}) , отмеченных маркерами на рис. 25. При $t > t_{drop}$, как видно из рис. 21, начинает расти из нуля масса приосевого образования. Кроме того, в решении системы (15) появляются две точки на оси z вместо одной (см. рис. 16 (петелька в вершине) и 20). А именно, кроме точки $z(a=0, t)$ появляется точка самопересечения $z_{drop}(t)$. В какую мощную приосевую структуру постепенно преобразуется первоначально маленькая капля показано на рис. 22.

При малых значениях $\hat{V}_o$ амплитуда $|z| \sim \hat{V}_o$; при этом капля формируется поздно. Дело в том, что на слабоискривленной поверхности время образования капли велико. Время t_{drop} быстро растет по мере уменьшения значения $\hat{V}_o$ (см. рис. 24–26). Увеличение скорости $\hat{V}_o$ (13) в нелинейной системе приводит к небольшому уменьшению величины $\hat{t}_{max}$. При $\hat{V}_o < 1.4$ время образования капли $\hat{t}_{drop}(\hat{V}_o)$ больше, чем $\hat{t}_{max}$. Это означает, что капля формируется на нисходящей ветви временной зависимости $z(0, t; \hat{V}_o)$. При $\hat{V}_o < 0.555$ имеем $\hat{t}_{drop}(\hat{V}_o) > \hat{t}_{bck}(\hat{V}_o)$, т. е. при достаточно малых амплитудах капля не успевает образоваться на всем отрезке времени $(0, t_{bck})$ существования пленки в полете от момента ее отделения

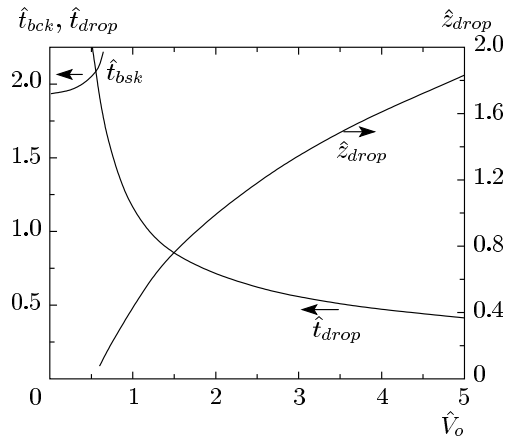


Рис. 26. Классификация решений в зависимости от параметра $\hat{V}_o$ (13). При $\hat{V}_o > 0.6435$ пленка перестает возвращаться на подложку. Точка $\hat{V}_o = 0.6435$, $\hat{t}_{bck} = 2.22$ является точкой окончания кривой $\hat{t}_{bck}(\hat{V}_o)$. Кривые $z(0, t; \hat{V}_o)$ на рис. 24 при $\hat{V}_o = 0.6$ и $\hat{V}_o = 0.65$ окаймляют критическое значение $\hat{V}_o = 0.6435$. Функции $\hat{t}_{drop}(\hat{V}_o)$ и $\hat{z}_{drop}(\hat{V}_o)$ дают координаты точки зарождения капли в вершине купола. Эти функции параметрически задают кривую, отдельные точки которой показаны маркерами на рис. 24 и 25

от подложки до момента ее возвращения на подложку. Соответственно, на временной зависимости $z(0, t; \hat{V}_o)$ при $\hat{V}_o < 0.555$ нет точки образования капли. При $\hat{V}_o > 0.555$ точка зарождения капли на зависимости $z(0, t; \hat{V}_o)$ имеется (см. рис. 24 и 25). В точке $\hat{V}_o = 0.555$, $\hat{t} = 2.09$ зависимости $\hat{t}_{bck}(\hat{V}_o)$ и $\hat{t}_{drop}(\hat{V}_o)$ пересекаются (рис. 26).

При $\hat{V}_o > 0.555$ капля успевает зародиться во время полета купола. После формирования капли, $t > t_{drop}$, зависимость $z(0, t; \hat{V}_o)$ становится достаточно условной. Действительно (см. рис. 20), на оси z появляются три точки: (снизу вверх) апекс контр-струи (кривая 3); примыкание купола к центральной зоне (кривая 2); вершина струи (кривая 4), см. также рис. 22. Функции $\hat{t}_{drop}(\hat{V}_o)$ и $\hat{z}_{drop}(\hat{V}_o)$ дают координаты точки зарождения капли в вершине купола, выделенные маркерами на рис. 24 и 25. Как видно из рис. 24, при увеличении параметра $\hat{V}_o$ растет расстояние $\hat{z}_{drop}(\hat{V}_o)$, на котором образуется капля. При этом время образования $\hat{t}_{drop}(\hat{V}_o)$ становится меньше. Оба эти обстоятельства вызваны увеличением скорости $\hat{V}_o$.

Как ясно из сказанного, асимптотика $\hat{V}_o \ll 1$ проста. Рассмотрим противоположный предел $\hat{V}_o \gg$

$\gg 1$ (см. рис. 24–26). Поверхностное натяжение остановит купол при сколь угодно большой кинетической энергии. Но z -координата точки остановки будет велика. При наличии остановки обязательно произойдет формирование капли. Разумеется, сказанное справедливо при бесконечной растяжимости пленки. На самом деле в условиях УКЛИ и тонких пленок ($d_f = 10\text{--}100$ нм) пленка разрывается при растяжении до толщины порядка 1 нм. Из исследования зависимости мгновенной толщины пленки от радиуса (см. рис. 19) следует, что разрыв происходит примерно по окружности недалеко от основания купола (без учета кристаллизации). При этом в пленке, покрывающей подложку, остается круглая дырка.

Если задать начальное распределение (18) и принять, что поверхностное натяжение $\sigma = 0$, $v_\sigma = 0$, $\hat{V}_o = \infty$, то правая часть системы (15) обращается в нуль, т. е. вещество летит по инерции с постоянной скоростью в направлении по нормали к поверхности подложки:

$$\hat{r}(\hat{a}, \hat{t}) = \hat{a}, \quad \hat{z}(\hat{a}, \hat{t}) = \hat{V}_o \hat{t} \cos^2(\pi \hat{a}/2). \quad (27)$$

При больших радиусах R_L пятна нагрева именно этим только и ограничиваются; но при изучении вспенивания капиллярность учитывают [55, 76–78]. Движение (27) растягивает пленку. Вычислим степень растяжения по формуле (21):

$$\frac{h}{h_o} = \frac{a/r}{s'_a} = \frac{1}{s'_a} = \frac{1}{\sqrt{1 + \left[\frac{\pi}{2} \hat{V}_o \hat{t} \sin(\pi \hat{a}) \right]^2}}.$$

Внутри произведения $\hat{V}_o \hat{t}$ капиллярная скорость v_σ сокращается. Как видим, максимум растяжения находится в точке перегиба начального профиля скорости, т. е. посередине отрезка $(0, R_L)$. На концах этого отрезка растяжения нет: $h = h_o$, а в середине отрезка толщина пленки убывает по закону

$$\frac{h}{h_o} = \frac{1}{1 + \frac{\pi^2}{4} \left(\frac{v_o t}{R_L} \right)^2}$$

с асимптотикой

$$\frac{2}{\pi} \frac{R_L}{v_o t} = \frac{2}{\pi} \frac{R_L}{z(a=0, t)}$$

на больших временах.

3.5. Блистеринг в плоской геометрии

В качественном отношении осесимметричный случай $2D_a$ (15), (16) аналогичен плоскому случаю

$2D_p$ (17). Поэтому будем действовать по схеме, примененной выше: линейное решение, классификация по параметру $\hat{V}_o$ и сопоставление линейных, нелинейных и МД-решений. Линеаризация $2D_p$ -системы (17) приводит к волновому уравнению

$$z_{tt} - v_\sigma^2 z''/2 = 0, \quad (28)$$

или

$$\hat{z}_{tt} - \hat{z}''/2 = 0.$$

Кроме того, в линейном приближении можно пренебречь смещениями лагранжевых частиц в горизонтальном направлении x ; в $2D_p$ -геометрии координата x используется вместо радиуса r . Соответственно, $x(a, t) = a$, $a \rightarrow x$. После подстановки $\hat{z}(\hat{x}, \hat{t}) = \exp(-i\hat{\omega}\hat{t})Z(\hat{x})$ получаем

$$Z'' + 2\hat{\omega}^2 Z = 0.$$

Это уравнение заменяет уравнение (23) для цилиндрических волн.

Нас интересуют стоячие капиллярные волны. В общем случае такая волна складывается из суперпозиции собственных мод:

$$\hat{z}(\hat{x}, \hat{t}) = \hat{V}_o \sum_{m=1}^{\infty} \frac{a_m}{\hat{\omega}_m} \sin(\hat{\omega}_m \hat{t}) \cos \frac{\pi(2m-1)\hat{x}}{2} \quad (29)$$

с дискретным спектром

$$\hat{\omega}_m = \frac{\pi(2m-1)}{2\sqrt{2}},$$

$$\hat{T}_m = \frac{2\pi}{\hat{\omega}_m} = \frac{4\sqrt{2}}{2m-1}, \quad m = 1, 2, \dots$$

Период первой моды равен $\hat{T}_1 = 4\sqrt{2} = 5.657$. Как видим, из-за уменьшения суммарной кривизны пленки (в $2D_p$ -случае нет кривизны $1/R_t$, см. уравнения (16), (17)) этот период существенно больше периода первой моды цилиндрической стоячей волны $\hat{T}_1^{2Da} = 3.695$ (24).

Коэффициенты a_m ряда Фурье (29) определяются профилем начальной скорости (18):

$$a_m = \frac{\int_{-1}^1 \cos^2(\pi \hat{x}/2) \cos[\pi(2m-1)\hat{x}/2] d\hat{x}}{\int_{-1}^1 \cos^2[\pi(2m-1)\hat{x}/2] d\hat{x}} = -\frac{(8/\pi) \cos(\pi m)}{(-3 - 4m + 4m^2)(1 - 2m)}. \quad (30)$$

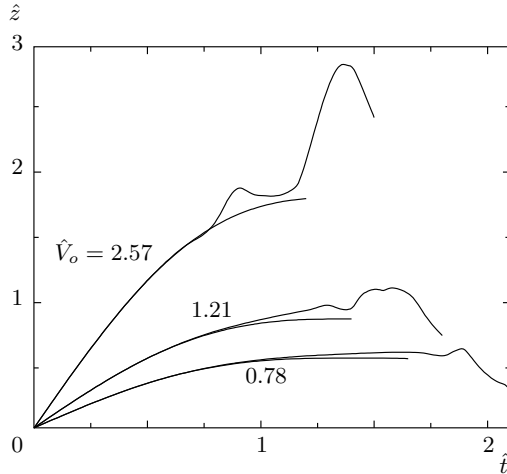


Рис. 27. Подъем вершины купола в $2D_p$ -геометрии. Показаны траектории вершины $z(a=0, t)$ согласно решению полной нелинейной системы (17) — верхние кривые — в сравнении с линейным решением (29) — нижние кривые. В каждой паре полное решение идет выше и устроено сложнее

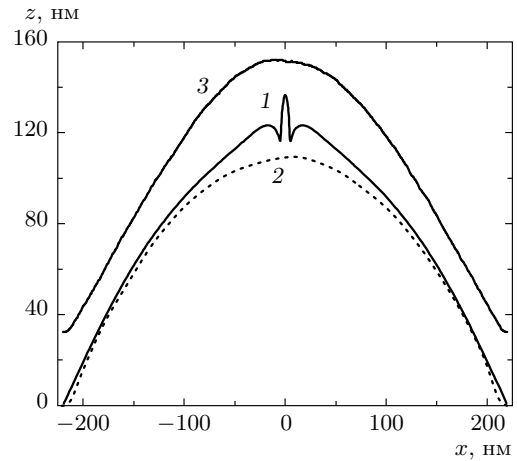


Рис. 28. Сопоставление МД-расчета (кривые 2, 3) и модели (17) — кривая 1, см. подпись к рис. 16. Параметры МД-расчета: толстая пленка с начальной толщиной $h = 32$ нм; $\hat{V}_o = 0.776379$. Приведено безразмерное время $\hat{t} = 1.89$ ($t = 6.47$ нс), чтобы можно было сопоставить этот рисунок с рис. 27

Разложение Фурье (29) с коэффициентами (30) полностью определяет линейное решение. Отметим, что двучлен $\cos^2(\pi \hat{x}/2) = 1/2 + (1/2) \cos(\pi \hat{x})$ не есть отрезок ряда (29). Действительно, ни константа, ни $\cos(\pi \hat{x})$ по отдельности не удовлетворяют граничным условиям (20) и поэтому не являются собственными модами задачи.

Линейное решение (29), (30) позволяет определить координаты $\hat{t}_{max}, \hat{z}_{max}$ точки остановки купола в его движении вверх и момент $\hat{t}_{bck}$ удара пленки о подложку, см. (26). Эти значения относятся к пределу малых параметров $\hat{V}_o$ (13). В $2D_p$ -геометрии получаем

$$\hat{t}_{bck} = 2.82843 (1.94128), \quad \hat{t}_{max} = 1.41421 (0.736047),$$

$$\begin{aligned} \hat{z}_{max} &= \hat{z}(\hat{x} = 0, \hat{t}_{max} = 1.41421) = \\ &= 0.707155 \hat{V}_o \quad (0.463843 \hat{V}_o). \end{aligned}$$

Здесь для сравнения в круглых скобках приведены значения (26), соответствующие $2D_a$ -случаю. Как видим, уменьшение кривизны в $2D_p$ -геометрии сказывается в увеличении времен $\hat{t}_{max}$ и $\hat{t}_{bck}$ и в увеличении дистанции остановки $\hat{z}_{max}$.

Классификация решений в зависимости от безразмерной скорости $\hat{V}_o$ (13) показана на рис. 27, который представляет собой обобщение рис. 24 и 25 на случай $2D_p$ -геометрии. Приведенные кривые

соответствуют трем МД-расчетам в $2D_p$ -геометрии при следующих значениях параметра $\hat{V}_o$: 0.776379, 1.21293 и 2.56695 (их округленные значения приведены на рис. 27). Чем больше скорость, тем больше расстояние, на которое вершина купола приподнимается над плоскостью подложки $z = 0$. Более гладкие кривые относятся к линейному решению (29), (30); они идут ниже. Нелинейные эффекты становятся важными, когда нелинейное решение начинает существенно отклоняться от линейного.

На рис. 28–30 показано сравнение результатов МД-моделирования и численного расчета системы (17). Это достаточно поздние моменты времени, когда скупивание вещества пленки в центральную зону становится существенным. Поэтому в приосевой области описание (17) в приближении бесконечно тонкой пленки теряет свою применимость. Тем не менее вне этой области решение системы (17) хорошо согласуется с МД-расчетом. Неплохое соответствие сохраняется долго даже в случае толстой пленки (рис. 28). В МД-расчете на рис. 28 после термализации термостатом и перед самым началом движения масса на единицу площади пленки $\mu_o = 5.27 \cdot 10^{-5}$ г/см². Соответствующая толщина $h_o = 32$ нм, $R_L/h_o = 6.9$.

Были выбраны разные параметры для МД-расчетов, чтобы оценить влияние физических условий на блистеринг. В расчете (см. рис. 28) безразмерная скорость равна $\hat{V}_o = 0.776379$. Остальные парамет-

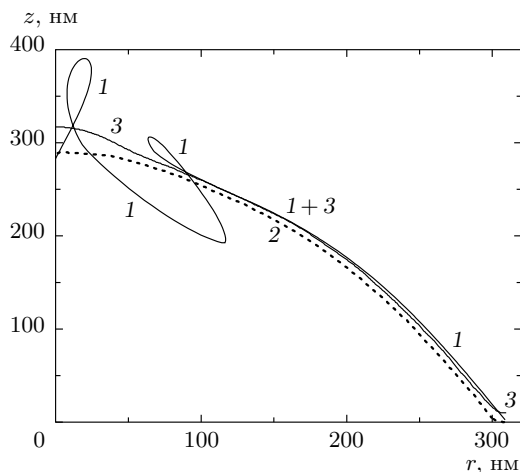


Рис. 29. Сопоставление результатов МД-моделирования (кривые 2, 3) и расчета системы (17) — кривая 1 — в случае в три раза более тонкой пленки, чем в случае рис. 28, в три раза большей скорости и в 1.5 раза увеличенного размера R_L (см. также подпись к рис. 16). $\hat{V}_o = 1.21293$; $\hat{t} = 1.75$ ($t = 4.39$ нс)

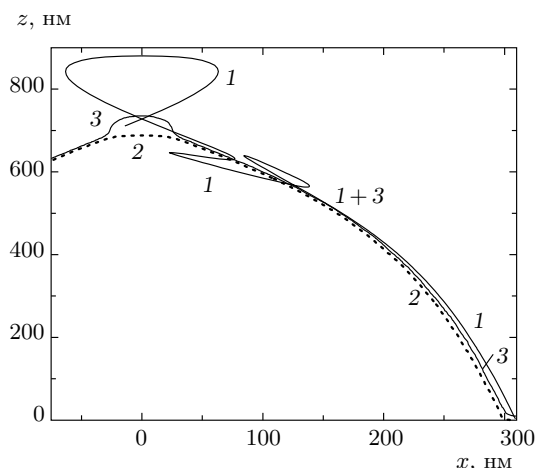


Рис. 30. Сопоставление результатов МД-расчетов и модели (17) в случае высокой начальной скорости: $v_o = 300$ м/с в два раза больше, чем в случае рис. 29 (обозначения кривых как на рис. 16, 28, 29). $\hat{V}_o = 2.56695$; $\hat{t} = 1.4$ ($t = 3.71$ нс)

ры: начальная скорость $v_o = 50$ м/с; число атомов $N_{at} = 2976320 \approx 3 \cdot 10^6$; $R_L = 220$ нм; толщина расчетного домена по координате, перпендикулярной плоскости рис. 28, $l_{\perp} = 4.2$ нм; $v_{\sigma} = 64.4$ м/с; во всех расчетах золото нагревалось до 1600 К, коэффици-

ент поверхностного натяжения при этой температуре 546 дин/см, а равновесная плотность 16.55 г/см³ (см. Приложение).

Параметры МД-расчета, показанного на рис. 29, следующие: $\hat{V}_o = 1.21293$; $v_o = 150$ м/с; $R_L = 310$ нм; $N_{at} = 1093752 \approx 1.1 \cdot 10^6$; $l_{\perp} = 4.04$ нм; $\mu_o = 1.43 \cdot 10^{-5}$ г/см²; $h_o = 8.63$ нм; $v_{\sigma} = 124$ м/с.

МД-расчет на рис. 30 имел следующие параметры: $\hat{V}_o = 2.56695$; $v_o = 300$ м/с; $R_L = 310$ нм; $N_{at} = 1169640 \approx 1.2 \cdot 10^6$; $l_{\perp} = 3.865$ нм; $\mu_o = 1.60 \cdot 10^{-5}$ г/см²; $h_o = 9.7$ нм; $v_{\sigma} = 117$ м/с.

Обратим внимание на небольшую неустойчивость в МД-расчете на рис. 28. Она нарушает симметрию $x \rightarrow -x$. Это явление связано с тепловыми флуктуациями в МД-расчете (инициация, точной симметрии нет) и торможением (усиление возмущений). Неустойчивость приводит к потере симметрии при распаде жидкой пленки на капли (см. ниже). В расчетах по модели (17) при повышенных значениях безразмерной начальной скорости неустойчивость выражена сильнее (ср. рис. 28 и 29, 30). Она охватывает центральную зону купола. В $2D_a$ -геометрии накопление нелинейных эффектов проявляется прежде всего в появлении капли на оси z (см. рис. 16, 24, 25). При этом вне капли поверхность купола остается некоторое время гладкой. В $2D_p$ -геометрии «разбалтывание» приосевой зоны может начаться раньше, чем образуется центральная капля (см. рис. 28, 29). В модели (17) мы полагаем, что капля начинает формироваться после появления самопересечения пленки. Вне центральной зоны купола решения по модели (17) и результаты МД-моделирования согласуются хорошо (см. рис. 29, 30). В $2D_p$ -геометрии наибольшее растяжение пленки и, соответственно, ее наименьшая толщина находятся ближе к центральной зоне, чем в $2D_a$ -случае (см. рис. 29, 30).

3.6. Разрыв пленки

Разрыв купола из-за его растяжения и утоньшения до толщины около 1 нм показан на рис. 31 (см. также рис. 3с в работе [84]). Разрыв происходит не мгновенно при $t \approx 4.44$ нс; это процесс, видимо, связанный с развитием жизнеспособного зародыша от тепловой флуктуации на сильно растянутой пленке. Длительность процесса порядка 10 пс (см. рис. 31). Явления, связанные с зарождением прокола пленки и его трехмерным развитием, рассматривались в работе [84]. Параметры МД-расчета в случае рис. 30 и 31 совпадают. Шаг оцифровки по горизонтали и вертикали МД-данных (размер пикселя) составлял 0.8 нм.

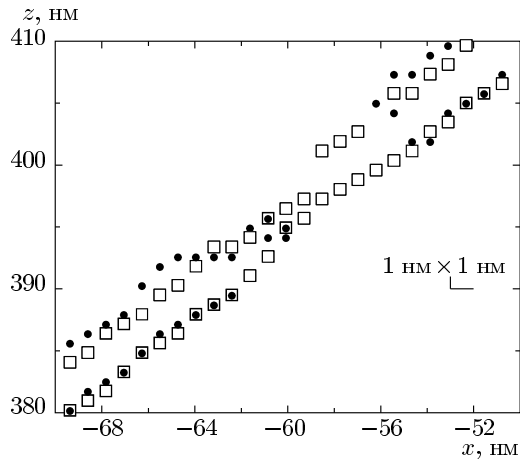


Рис. 31. Разрыв пленки вследствие ее растяжения. Параметры соответствуют рис. 30. Маркеры отслеживают границу пленки. Показаны два момента: перед самым разрывом, $t = 4.435$ нс (квадраты) и сразу после него (кружки), $t = 4.454$ нс

Дисперсионное соотношение для капиллярных волн на глубокой воде имеет вид $\omega = \sqrt{\sigma/\rho} k^{3/2}$, где ρ — плотность воды. Колебания малой амплитуды на тонкой пленке описываются волновым уравнением (28). Подстановка $z \propto \exp(-i\omega t + ikx)$ в уравнение (28) определяет линейный по волновому вектору k закон дисперсии

$$\omega = (v_\sigma/\sqrt{2}) k. \quad (31)$$

Согласно (31), фазовая и групповая скорости поверхностной волны одинаковы и равны $v_\sigma/\sqrt{2}$. Таким образом, волна, связанная с поверхностным натяжением на тонкой пленке, аналогична звуковой волне в упругой среде.

Разрыв пленки (см. пример на рис. 31) вызывает резкое изменение силовых напряжений. В силу уравнений (28) и (31) сигнал о том, что произошел разрыв, распространяется по пленке с конечной скоростью $v_\sigma/\sqrt{2}$. Динамика формирования и расширения разрыва пленки имеет некоторые общие черты с динамикой нуклеации несплошности [85] в растянутом конденсированном веществе. В случае объемной среды возмущение от разрыва локализовано в области между откольным импульсом и границей паровой полости. Этот импульс разбегается от точки разрыва со скоростью звука. Откольный импульс снимает напряжение растяжения (разгружает растянутое вещество), поскольку за ним растянутое (отрицательное давление $p < 0$) вещество сжимается в нормальное состояние, $p \rightarrow 0$. Таким образом,

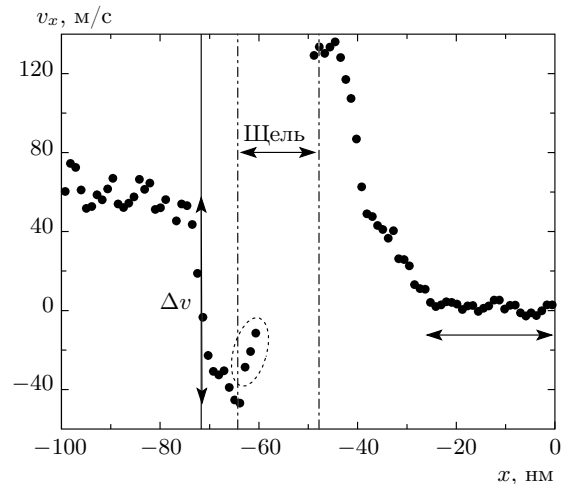


Рис. 32. Скачок скорости, напоминающий откольный импульс, в момент $t = 4.512$ нс. Фронт скачка отмечен вертикальной стрелкой Δv . Это фронт слева от разрыва «щель». Фронт, бегущий направо, находится в данный момент в точке $x = -40$ нм. Параметры расчета соответствуют высокоскоростному случаю, показанному на рис. 30. Двусторонняя горизонтальная стрелка отмечает положение центральной капли, которая формируется в вершине купола (см. рис. 30 и 33)

откольный импульс является волной сжатия, которая повышает давление от значения $p < 0$ до значения $p \approx 0$. Из-за уменьшения удельного объема при снятии растяжения (разгрузка), объем полости (несплошности), возникшей при нуклеации, растет. На начальной стадии нуклеации скорости откольного импульса и расширения полости сопоставимы. Затем расширение полости резко замедляется и переходит в сильнодозвуковой режим движения.

Обычный звук распространяется в расплаве золота, нагретом до температуры 1600 К, со скоростью примерно 2.25 км/с [36, 37, 53, 54]. Следов его распространения на пленке не видно. Дело в том, что пленка тонкая, с двух сторон она граничит с областью постоянного давления (вакуум). Поэтому обычный звук, распространяясь по пленке, затухает на расстоянии порядка толщины пленки. Посмотрим, как обстоит дело со звуком (28), (31).

На рис. 32 представлено мгновенное распределение горизонтальной компоненты скорости $v_x(x, t = 4.512 \text{ нс})$ в окрестности разрыва, показанного на рис. 31, через 70 пс после разрыва. Разрыв выделен двумя вертикалями «щель» на рис. 32 и 33, которые относятся к одному моменту времени. Эл-

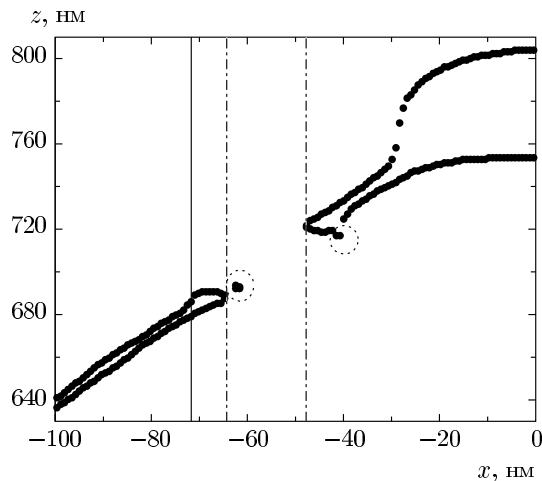


Рис. 33. Образование капель (утолщений) на берегах разрыва. Это новые капли по отношению к центральной капле. Крошечные нанокapли, взятые в кружки, не существенны. Видим, что фронт скачка скорости на рис. 32 совпадает с границей между каплями и пленкой. На рис. 32 скачок отмечен вертикальной стрелкой, а здесь — сплошной вертикальной прямой

липсом внизу отмечена крошечная самостоятельная капля, отделившаяся в процессе разрыва. Есть еще одна такая капля возле правого края разрыва (см. рис. 33). Она также выделена с помощью эллипса. Размеры этих капель меньше нанометра. От разрыва в две стороны по пленке распространяются два скачка скорости (см. рис. 32). Идущий налево скачок выделен вертикальной стрелкой на рис. 32. В той же точке находится левая вертикаль на рис. 33. Правый скачок распространяется в сторону центральной капли. В момент $t = 4.512$ нс, показанный на рис. 32 и 33, координата правого скачка равна $x = -40$ нм. Горизонтальная протяженность левой половины центральной капли отмечена двусторонней горизонтальной стрелкой на рис. 32. Внутри центральной капли горизонтальная компонента скорости v_x близка к нулю. Это связано с тем, что потоки массы, входящие в центральную каплю слева и справа, приносят в каплю горизонтальные импульсы противоположного знака.

Подсчет скорости движения вещества за скачком относительно вещества пленки перед скачком дает $\Delta v_t = 165$ м/с в момент $t = 4.512$ нс, относящийся к рис. 32 и 33. Для подсчета величины Δv_t векторы скорости слева $\mathbf{v}_-$ и справа $\mathbf{v}_+$ от скачка вычитались. Проекция разности $\mathbf{v}_- - \mathbf{v}_+$ на направление

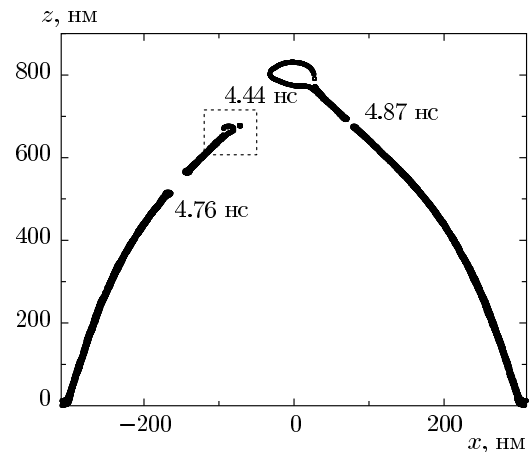


Рис. 34. Эволюция купола для начальных параметров, заданных на рис. 30 (большая начальная скорость 300 м/с); $t = 4.896$ нс. Имеется выраженная центральная капля и капли на берегах разрывов. Капля на правом берегу первого разрыва уже слилась с центральной каплей. Цифры у трех разрывов указывают моменты времени, в которые произошел данный разрыв. Капля на левом берегу первого разрыва показана крупно на рис. 35

вдоль пленки равняется Δv_t . Вычисление скорости $v_\sigma/\sqrt{2}$ (31) по формуле (12) с учетом уменьшения толщины пленки до 2.35 нм дает $v_\sigma/\sqrt{2} = 168$ м/с. Получается, что на начальной стадии после разрыва фронт скачка движется по пленке со скоростью звука (31). В этом смысле этот фронт похож на откольный импульс, который тоже распространяется со скоростью звука (слабая УВ).

На рис. 34 представлена ситуация на момент $t = 4.896$ нс, когда на поверхности купола имеются уже три разрыва. Моменты образования разрывов приведены у каждого разрыва. Дальнейшая судьба купола на рис. 34 состоит в формировании центральной капли, которая затягивает в себя кусочек пленки от третьего разрыва (4.87 нс), и образования боковой капли слева. Обе капли улетают вверх. В боковую каплю слева трансформируется кусочек пленки между первым (4.44 нс) и вторым (4.76 нс) разрывами. Второй разрыв происходит независимо от первого. Хотя первый разрыв, наподобие откольного импульса, прекращает растяжение пленки, область утолщения пленки (в которой действует откольный импульс и прекращается растяжение) ограничена каплей. Поэтому вне капли растяжение пленки продолжается и происходит второй разрыв пленки.

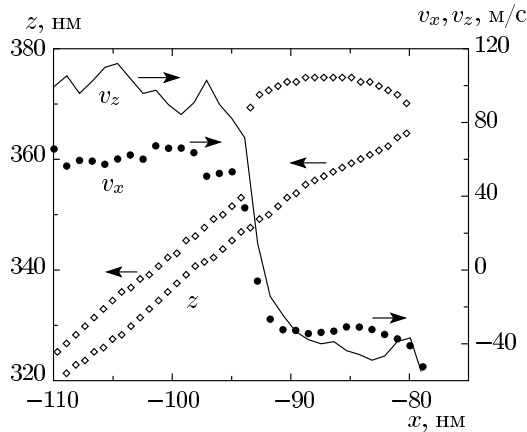


Рис. 35. Вид области внутри прямоугольника на рис. 34. Видны крупная капля и скачок скорости, связанный с границей между каплей и пленкой. Это вид капли, показанной на рис. 33 слева, в более поздний момент времени. С течением времени капля поглощает новые и новые порции пленки, ее размер растет

На рис. 35 показан вид капли с рис. 33, но в более поздний момент времени. Вместе с формой капли на рис. 35 приведены распределения скорости, как на рис. 32. Вычисление скорости капли относительно вещества пленки и сравнение этой скорости с местной текущей скоростью звука (31) показывают, что скачок скорости продолжает двигаться со скоростью звука! Это кажется удивительным. Действительно, капля большая, с момента ее образования прошло 456 пс, а она по-прежнему движется со скоростью звука, как малое возмущение системы уравнений (17), ср. с рис. 32. Получается, что скачок скорости эквивалентен откольному импульсу в объемном случае, капля эквивалентна области сжатия между фронтом откольного импульса и полостью, а трехмерная полость эквивалентна разрыву пленки. Это плохо согласуется с очевидным нелинейным характером течения при наличии крупной капли. Мы не видим преобразования пленка → пленка при переходе через скачок скорости. Вместо этого вещество пленки присоединяется к веществу капли. Последнюю считать пленкой не приходится. Кажется бы, капля должна действовать как некоторое граничное условие на пленку вне капли (см. в этой связи рис. 16, 29 и 30 с центральной каплей и примыкающей пленкой; см. также обсуждение сравнений этих рисунков с МД-моделированием).

Совпадение скорости движения капли (относительно вещества пленки перед ней) со скоростью

звuka (31) можно объяснить. Запишем закон сохранения импульса

$$2\sigma t = d_f l \rho \Delta v. \quad (32)$$

В балансе импульса (32) слева стоит сила, действующая на каплю, а справа — набранный импульс. Коэффициент 2 пишется, поскольку пленка имеет две поверхности. Этот импульс накапливается за время t . За это время в каплю переходит кусок пленки длиной l . Толщина пленки обозначена d_f . При пересечении фронта скачка скорости, который одновременно является границей капли, скорость частицы вещества изменяется на величину Δv . Материальная частица в капле и фронт скачка движутся со скоростью Δv относительно вещества пленки. Подставим в (32) кинематическое условие $l = t \Delta v$. В результате получаем

$$\Delta v = v_\sigma / \sqrt{2}, \quad (33)$$

т.е. закон сохранения импульса заставляет каплю двигаться со скоростью звука (31).

Запишем закон сохранения энергии. Пусть пленка покоится. С одного из ее концов на пленку надвигается капля. Например, на рис. 35 капля движется справа налево. Скорость капли относительно пленки равна Δv (33). Приравнявая работу сил поверхностного натяжения к кинетической энергии капли и диссипировавшей энергии Q , получаем

$$2l\sigma = l d_f \rho (\Delta v)^2 / 2 + Q l,$$

где слева стоит израсходованная капиллярная энергия, а справа — сумма кинетической энергии капли и энергии, перешедшей в тепло в расчете на единицу площади. Подставляя сюда приращение скорости (33), находим, что половина поверхностной энергии переходит в кинетическую энергию, а половина диссипирует: $Q = \sigma$. В формулах выше полагалось, что пленка тонкая. Поэтому площадь пленки много больше площади образовавшейся из нее капли. Соответственно капиллярной энергией капли пренебрегаем.

Наличие соотношения (33) не означает, что на поверхности пленки (т.е. вне концевой капли) волновое уравнение (28) и скорость звука (31) отменяются. Из соотношения (33) следует, что концевая капля, сформированная разрывом пленки, движется со скоростью звука (как откольный импульс). Поэтому материальная частица пленки (вплоть до ее поглощения каплей) «не знает» о произошедшем разрыве. В связи с обсуждением числа Маха отметим, что

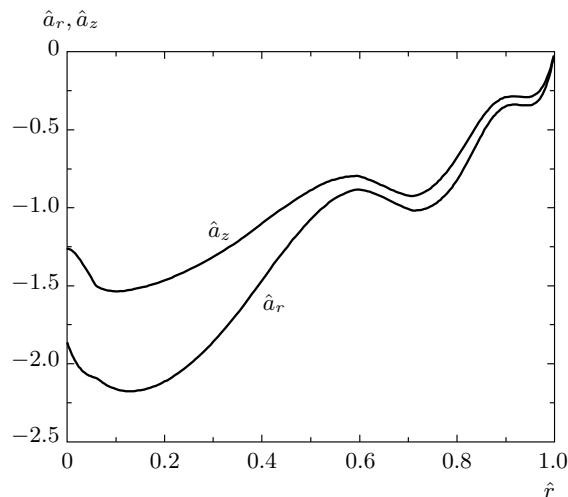


Рис. 36. Ускорения a_r материальных частиц пленки к оси z и замедление a_z частиц вдоль оси в момент времени $t = 1.846$ нс ($\hat{t} = 0.70954$). Параметры и момент времени соответствуют осесимметричному ($2D_a$) лазерному воздействию на рис. 16

при подъеме купола на высоту $z \sim R_L$, скорость втекания вещества в центральную каплю сравнима со скоростью звука (31), $\Delta v \approx 0.5v_\sigma/\sqrt{2}$.

Подчеркнем, что с ростом начальной скорости v_o (18) и безразмерного определяющего параметра $\hat{V}_o$ (13) (пусть значения σ и μ_o (16) фиксированы) меняется направление преимущественного вылета (вниз или вверх) оторвавшейся от подложки массы пленки золота. Это можно понять из графиков на рис. 24, 25 и 27. При $\hat{V}_o < A$ основная масса возвращается на подложку, в обратном случае большая часть массы улетает (абляция); величина $A \approx 1.8$. Понятие «основная масса» относится к центральной капле, которая всегда движется примерно по вертикали (вдоль оси z). Это связано с приближительной симметрией купола. Угол вылета малой капли, если она есть, определяется вектором импульса, который имелся на оторвавшемся кусочке пленки до его отрыва от основной пленки. Пример такого кусочка показан на рис. 34 (кусочек между разрывами 4.76 и 4.44 нс). В случае, представленном на рис. 29, центральная капля ударяет в подложку. В случае на рис. 30 центральная капля уходит по вертикали вверх.

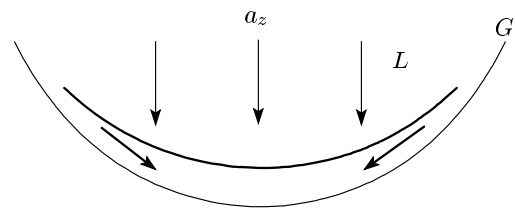


Рис. 37. Поле тяжести a_z в системе координат, связанной с границей G , прижимает жидкость L к границе G . Скатывающая сила является причиной ускорения жидкости к оси z . Эта картина объясняет появление центральной капли (см. рис. 16, 17, 22, 28–30, 33, 34) и приосевой струи (см. рис. 22, 23)

3.7. Физические причины стекания вещества к оси и образования струи

Капиллярные силы принципиально меняют характер движения пленки по сравнению со случаем без поверхностного натяжения (ср. кривые 1–3 на рис. 16 с кривой 4). Сопротивление поверхности купола его растяжению приводит к появлению мощных ускорений и замедлений, $\partial^2 r / \partial t^2 \equiv a_r$ и $\partial^2 z / \partial t^2 \equiv a_z$. Типичный пример представлен на рис. 36. Это повтор рис. 16, на котором вместо смещений показаны ускорения, которые приводят к таким смещениям. Мы не стали приводить на рис. 36 ускорений в веществе, которое попало в петельку, см. рис. 16. Безразмерные ускорения $\hat{a}$ в капиллярной системе единиц переводятся в размерные ускорения по формуле $|\partial^2 r / \partial t^2| = (v_\sigma^2 / R_L) \hat{a}$. Подставляя параметры МД-расчета, приведенного на рис. 16, для масштаба ускорения v_σ^2 / R_L получаем величину $4.4 \cdot 10^{12}$ см/с². Эта величина на девять порядков больше ускорения земного тяготения, в сто раз превышает ускорение свободного падения на белых карликах и составляет проценты от громадного ускорения на нейтронных звездах.

В неинерциальной системе координат, связанной с замедляющимся куполом G (см. рис. 36), замедление a_z эквивалентно эффективному полю тяжести (эффект торможения автобуса), см. рис. 37. Составляющая ускорения, касательная к поверхности купола, приводит к соскальзыванию жидкости вниз к оси симметрии. Таким образом, легко выясняется происхождение скоростей, направленных к центру. Поток вещества, текущего к оси, во-первых, вызывает уменьшение толщины пленки купола, во-вторых, формируется массивное приосевое образование (см. рис. 22). Столкновение радиального потока пленки с осью приводит к появлению

струи и контрструи. Это стандартный эффект теории столкновения струй [82, 83]. Таким образом, складывается ясное понимание физики лазерного наноструктурирования в актуальных экспериментах [1, 2, 28–33, 86–88], в которых наблюдаются наноструйки и контрструя (см. рис. 7 в работе [28]). В предыдущих теоретических построениях не удавалось объяснить происхождение радиального течения жидкой фазы в центральную зону.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотренная выше задача о пространственно-локализованном лазерном воздействии на пленочную мишень важна для многих приложений от микроэлектроники до биомедицины и наноплазмоники [1, 2, 28–33, 86–88]. В работе построена детальная модель воздействия на пленки. Она охватывает как стадию отслойки, длящуюся десятки пикосекунд, так и стадию развития купола, которая продолжается единицы и десятки наносекунд. Изучены тонкости взаимодействий гидродинамических волн в пленке и в подложке. Представлена физическая картина отслаивания (блистеринг) пленки от подложки. Описания абляции тонких пленок от диэлектрических подложек ранее не существовало.

Хотя представления о термомеханическом характере быстрой (изохорический нагрев) абляции развиты к настоящему времени хорошо [4, 5, 14–18, 44–47, 56, 63, 65, 67, 69, 89], в данной работе излагается ряд новых аспектов. Найдена связь между поглощенным флюенсом и скоростью отлета пленки золота от подложки (разд. 2). Осуществлен крупномасштабный МД-расчет в осесимметричной геометрии (разд. 3.2, 3.3). Продемонстрировано, каким образом формируется наноструя (см. рис. 22). Исследована нелинейная система уравнений в частных производных, описывающая полет купола (разд. 3.4, 3.5). Изучено влияние геометрии (плоский и осесимметричный случаи), разд. 3. Аналитически рассмотрен случай малых скоростей отлета пленки от подложки (линейная теория, случаи $2D_a$ и $2D_p$, соответственно разд. 3.4 и 3.5). Проанализированы процессы распада пленки и формирования нанокпель (разд. 3.6). Найдено простое объяснение феномену стекания вещества в зону вершины купола (разд. 3.7). Именно этот процесс приводит к формированию струй и контрструй (разд. 3.7).

Исследование выполнено при поддержке Российского научного фонда (проект № 14-19-01599). Молекулярно-динамическое моделирование было прове-

дено на суперкомпьютере «Ломоносов» Московского государственного университета.

ПРИЛОЖЕНИЕ

Межчастичный потенциал, бинадаль и поверхностное натяжение

В МД-расчетах был использован межчастичный потенциал золота из работы [70]. Этот потенциал соответствует методу погруженного атома (ЕАМ-потенциал). Сравним данные, полученные с помощью УРС [36, 37, 53, 54] и согласно потенциалу ЕАМ. Данное УРС было использовано при гидродинамических расчетах абляции пленки золота с подложки в разд. 2. Метод нахождения термодинамических параметров представлен на рис. 38. Берется пленка золота толщиной примерно 25 нм. Пленка имеет две свободные границы. Координата x на рис. 38 направлена перпендикулярно плоскости пленки. На рисунке крупно показаны два околограничных слоя пленки, средняя часть опущена.

Методика определения поверхностного натяжения и термодинамических параметров на бинадали заключается в следующем. Вещество пленки разогревается термостатом до заданной температуры. Затем в течение достаточно продолжительного времени система термостатируется. Параметры определяются тогда, когда система пришла в термодинамическое равновесие. Значения поверхностного натяжения для четырех температур, найденные таким методом, приведены выше на рис. 15. Отметим, что

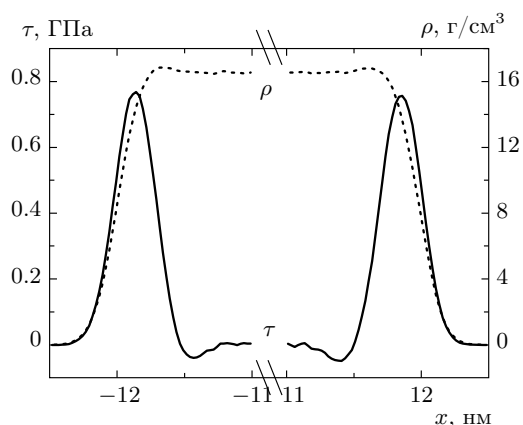


Рис. 38. Методика определения поверхностного натяжения и термодинамических параметров на бинадали с помощью МД-моделирования;
 $\tau = (P_x - P_y)/2$

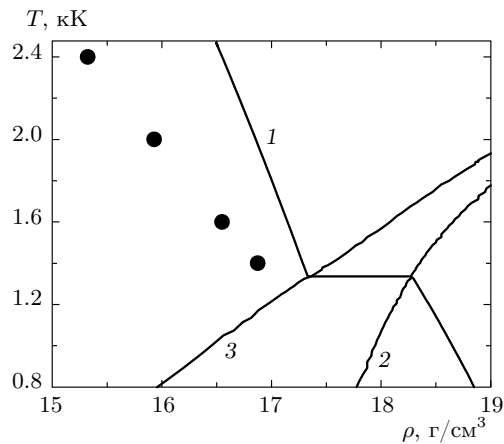


Рис. 39. Сравнение кривых кипения (сплошные кривые — УРС [36, 37, 53, 54], маркеры — ЕАМ-потенциал): 1 — бинодаль, 2 — солидус, 3 — ликвидус. Тройной точке соответствует горизонтальный отрезок

они неплохо укладываются на зависимость $\sigma(T)$ из работы [75]. Чтобы определить σ , нужно проинтегрировать напряжение сдвига τ на рис. 38 по координате x .

Вне пленки на рис. 38 давление мало, пленка очень медленно (температуры низкие) испаряется. Температура кипения золота составляет 3243 К. При этой температуре давление насыщенных паров над расплавом золота достигает одной атмосферы. Давления порядка даже сотен атмосфер ничтожны по сравнению с напряжением сдвига τ на рис. 38. Поэтому наличие паров не сказывается на точности определения капиллярного коэффициента в интересующем нас диапазоне температур.

Плотность вещества в центральной части пленки на рис. 38 соответствует состоянию на бинодали согласно использованному ЕАМ-потенциалу. Интересующий нас участок бинодали называется кривой кипения. На нем конденсированная фаза (жидкость) граничит с двухфазной областью пар–жидкость. Сравнение кривых кипения, полученных с помощью УРС и МД-моделирования, показано на рис. 39. МД-значениям на бинодали соответствуют маркеры.

Потенциал ЕАМ значительно занижает коэффициент поверхностного натяжения σ (в два раза, см. рис. 15). Коэффициент теплового расширения $\beta = (\partial \ln V / \partial T)_p$, наоборот, оказывается завышенным (см. рис. 39). Поэтому кривая кипения, полученная из МД-расчета, идет ниже. Соответственно, крити-

ческая температура, определенная по ЕАМ-потенциалу, будет меньше, а давление насыщенных паров — больше (при равных температурах). Любопытно, что коэффициенты β , так же как σ , различаются в два раза: $\beta_{EOS} = 0.48 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$, $\beta_{EAM} = 0.96 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$. В твердой фазе погрешность определения $\beta \approx 0.43 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ гораздо меньше. Параметры твердой фазы использованный ЕАМ-потенциал описывает с хорошей точностью [70].

ЕАМ-потенциал аккуратно представляет параметры тройной точки: температуру плавления T_m и разность плотностей твердой и жидкой фаз. Для температуры T_m ЕАМ-потенциал [70] дает значение 1330 К, тогда как справочное значение T_m равно 1337 К. Поэтому МД-кривая кипения на рис. 39 исходит из левого конца отрезка, относящегося к тройной точке на плоскости ρ, T . Величина β — это дифференциальный коэффициент, ее вычисление требует дифференцирования. Соответственно ошибка больше. Плотность расплава, найденная с помощью ЕАМ-потенциала [70], хорошо согласуется с плотностью полученной с использованием УРС. Даже в точке с наибольшей температурой 2.4 кК на рис. 39 плотность лишь на 8 % меньше.

ЛИТЕРАТУРА

1. D. S. Ivanov, A. I. Kuznetsov, V. P. Lipp et al., Appl. Phys. A **111**, 675 (2013).
2. Y. P. Meshcheryakov, M. V. Shugaev, Th. Mattle et al., Appl. Phys. A **113**, 521 (2013).
3. K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 224 (1998).
4. Н. А. Иногамов, А. М. Опарин, Ю. В. Петров и др., Письма в ЖЭТФ **69**, 284 (1999).
5. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, Yu. V. Petrov et al., Proc. SPIE **9065**, 906502 (2013).
6. С. И. Анисимов, Б. Л. Капельювич, Т. Л. Перельман, ЖЭТФ **66**, 776 (1974).
7. Ю. В. Петров, Н. А. Иногамов, К. П. Мигдал, Письма ЖЭТФ **97**, 24 (2013).
8. Z. Lin, L. V. Zhigilei, and V. Celli, Phys. Rev. B **77**, 075133 (2008).
9. K. P. Migdal, Yu. V. Petrov, and N. A. Inogamov, Proc. SPIE **9065**, 906503 (2013).
10. N. A. Inogamov, A. Ya. Faenov, V. V. Zhakhovsky et al., Contrib. Plasm. Phys. **51**, 419 (2011).

11. Ю. В. Петров, Н. А. Иногамов, Письма ЖЭТФ **98**, 316 (2013).
12. Н. А. Иногамов, С. И. Анисимов, Б. Ретфельд, ЖЭТФ **115**, 2091 (1999).
13. S. I. Anisimov, N. A. Inogamov, A. M. Oparin et al., Appl. Phys. A **69**, 617 (1999).
14. В. В. Жаховский, К. Нишихара, С. И. Анисимов, Н. А. Иногамов, Письма в ЖЭТФ **71**, 241 (2000).
15. L. V. Zhigilei and B. J. Garrison, J. Appl. Phys. **88**, 1281 (2000).
16. С. И. Анисимов, В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов и др., Письма в ЖЭТФ **77**, 731 (2003).
17. P. Lorazo, L. J. Lewis, and M. Meunier, Phys. Rev. Lett. **91**, 225502 (2003).
18. M. E. Povarnitsyn, T. E. Itina, M. Sentis et al., Phys. Rev. B **75**, 235414 (2007).
19. F. Baset, K. Popov, A. Villafranca et al., Opt. Express **21**, 12527 (2013).
20. B. Nagler, U. Zastra, R. R. Fäustlin et al., Nature Phys. **5**, 693 (2009).
21. J. Colgan, J. Abdallah, Jr., A. Ya. Faenov et al., Phys. Rev. Lett. **110**, 125001 (2013).
22. B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis, At. Data Nucl. Data Tables **54**, 181 (1993).
23. N. A. Inogamov, A. Ya. Faenov, V. V. Zhakhovskii et al., Contrib. Plasm. Phys. **51**, 361 (2011).
24. M. Ishino, A. Ya. Faenov, M. Tanaka et al., Appl. Phys. A **110**, 179 (2013).
25. M. Ishino, A. Ya. Faenov, M. Tanaka et al., Proc. SPIE **8849**, 88490F (2013); doiL 10.1117/12.2022425.
26. E. N. Borodin, A. E. Mayer, and V. S. Krasnikov, Current Appl. Phys. **11**, 1315 (2011).
27. P. K. Patel, A. J. Mackinnon, M. H. Key et al., Phys. Rev. Lett. **91**, 125004 (2003).
28. C. Unger, J. Koch, L. Overmeyer, and B. N. Chichkov, Opt. Express **20**, 24864 (2012).
29. Y. Nakata, T. Okada, and M. Maeda, Jpn. J. Appl. Phys. **42**, L1452 (2003).
30. F. Korte, J. Koch, and B. N. Chichkov, Appl. Phys. A **79**, 879 (2004).
31. Y. Nakata, N. Miyanaga, and T. Okada, Appl. Surf. Sci. **253**, 6555 (2007).
32. A. I. Kuznetsov, J. Koch, and B. N. Chichkov, Appl. Phys. A **94**, 221 (2009).
33. В. И. Емельянов, Д. А. Заярный, А. А. Ионин и др., Письма ЖЭТФ **99**, 601 (2014).
34. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, S. I. Ashitkov et al., Appl. Surf. Sci. **255**, 9712 (2009); arXiv:0812.2965.
35. N. A. Inogamov, Yu. V. Petrov, V. V. Zhakhovsky et al., AIP Conf. Proc. **1464**, 593 (2012).
36. А. В. Бушман, И. В. Ломоносов, В. Е. Фортков, *Уравнения состояния металлов при высоких плотностях энергии*, ИХФЧ РАН, Черноголовка (1992).
37. A. V. Bushman, G. I. Kanel', A. L. Ni, and V. E. Fortov, *Intense Dynamic Loading of Condensed Matter*, Taylor & Francis (1993).
38. Д. М. Медведев, Ю. В. Петров, ЖЭТФ **115**, 231 (1999).
39. V. Recoules, J. Clerouin, G. Zerah et al., Phys. Rev. Lett. **96**, 055503 (2006).
40. М. Б. Агранат, Н. Е. Андреев, С. И. Ашитков и др., Письма ЖЭТФ **85**, 328 (2007).
41. M. E. Veysman, M. B. Agranat, N. E. Andreev et al., J. Phys. B **41**, 125704 (2008).
42. S. Khakshouri, D. Alfe, and D. M. Duffy, Phys. Rev. B **78**, 224304 (2008).
43. P. R. Levashov, G. V. Sin'ko, N. A. Smirnov et al., J. Phys.: Condens. Matter. **22**, 505501 (2010).
44. E. G. Gamaly, Phys. Rep. **508**, 91 (2011).
45. P. A. Loboda, N. A. Smirnov, A. A. Shadrin, and N. G. Karlykhanov, High Energy Density Phys. **7**, 361 (2011).
46. С. В. Стариков, В. В. Стегайлов, Г. Э. Норман и др., Письма ЖЭТФ **93**, 719 (2011).
47. С. Г. Бежанов, А. П. Канавин, С. А. Урюпин, КЭ **41**, 447 (2011).
48. Г. Э. Норман, С. В. Стариков, В. В. Стегайлов, ЖЭТФ **141**, 910 (2012).
49. G. Norman, S. Starikov, V. Stegailov et al., J. Appl. Phys. **112**, 013104 (2012).
50. G. V. Sin'ko, N. A. Smirnov, A. A. Ovechkin et al., High Energy Density Phys. **9**, 309 (2013).
51. G. E. Norman, S. V. Starikov, V. V. Stegailov et al., Contrib. Plasma Phys. **53**, 129 (2013).

52. Я. Б. Зельдович, Ю. П. Райзер, *Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений*, Наука, Москва (1966).
53. <http://teos.ficp.ac.ru/rusbank/>.
54. К. В. Хищенко, Письма в ЖТФ **30**(19), 65 (2004).
55. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, V. A. Khokhlov et al., J. Phys.: Conf. Ser. **510**, 012041 (2014).
56. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, V. A. Khokhlov et al., J. Phys.: Conf. Ser. **500**, 192023 (2014).
57. V. V. Stegailov, Contrib. Plasma Phys. **50**, 31 (2010).
58. D. Fisher, M. Fraenkel, Z. Henis et al., Phys. Rev. E **65**, 016409 (2001).
59. *Физические величины*. Справочник под ред. И. С. Григорьева, Е. З. Мейлихова, Энергоатомиздат, Москва (1991).
60. W. Ebeling, A. Foerster, V. Fortov et al., *Thermophysical Properties of Hot Dense Plasmas*, Teubner-Texte zur Physik, Vol. 25, Teubner Verlagsgesellschaft, Stuttgart (1991).
61. A. Yu. Kuksin, G. E. Norman, V. V. Stegailov, and A. V. Yanilkin, Comp. Phys. Comm. **177**, 34 (2007).
62. D. K. Ilnitsky, V. A. Khokhlov, N. A. Inogamov et al., J. Phys.: Conf. Ser. **500**, 032021 (2014).
63. A. K. Upadhyay, N. A. Inogamov, B. Rethfeld, and H. M. Urbassek, Phys. Rev. B **78**, 045437 (2008).
64. Ya. Cherednikov, N. A. Inogamov, and H. M. Urbassek, J. Opt. Soc. Amer. B **28**, 1817 (2011).
65. B. J. Demaske, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, and I. I. Oleynik, Phys. Rev. B **82**, 064113 (2010).
66. B. Chimier and V. T. Tikhonchuk, Phys. Rev. B **79**, 184107 (2009).
67. L. V. Zhigilei, Zh. Lin, and D. S. Ivanov, J. Phys. Chem. C **113**, 11892 (2009).
68. M. E. Povarnitsyn, T. E. Itina, K. V. Khishchenko, and P. R. Levashov, Appl. Surf. Sci. **253**, 6343 (2007).
69. A. N. Volkov and L. V. Zhigilei, J. Phys.: Conf. Ser. **59**, 640 (2007).
70. V. V. Zhakhovskii, N. A. Inogamov, Yu. V. Petrov et al., Appl. Surf. Sci. **255**, 9592 (2009).
71. N. A. Inogamov, A. Ya. Faenov, V. A. Khokhlov et al., Contrib. Plasma Phys. **49**, 455 (2009).
72. Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский, Письма в ЖЭТФ **100**, 6 (2014).
73. F. Aqra and A. Ayyad, Materials Lett. **65**, 2124 (2011).
74. E. B. Webb III and G. S. Grest, Phys. Rev. Lett. **86**, 2066 (2001).
75. V. K. Semenchuk, *Surface Phenomena in Metals and Alloys*, Pergamon, New York (1961).
76. В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов, К. Nishihara, Письма в ЖЭТФ **87**, 491 (2008).
77. V. Zhakhovskii, N. Inogamov, and K. Nishihara, J. Phys.: Conf. Ser. **112**, 042080 (2008).
78. С. И. Ашитков, Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский и др., Письма в ЖЭТФ **95**, 192 (2012).
79. Е. В. Голосов, А. А. Ионин, Ю. Р. Колобов и др., ЖЭТФ **140**, 21 (2011).
80. J. Reif, Springer Ser. IN Mater. Sci. **130**, 19 (2010).
81. A. Ya. Vorobyev and Chunlei Guo, Opt. Express **14**, 2164 (2006).
82. G. Birkhoff and E. H. Zarantonello, *Jets, Wakes and Cavities*, Acad. Press, New York (1957).
83. М. А. Лаврентьев, Б. В. Шабат, *Проблемы гидродинамики и их математические модели*, Наука, Москва (1973).
84. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, S. I. Ashitkov et al., J. Phys.: Conf. Ser. **500**, 112070 (2014).
85. Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский, С. И. Ашитков и др., ЖЭТФ **134**, 5 (2008).
86. Y. P. Meshcheryakov and N. M. Bulgakova, Appl. Phys. A **82**, 363 (2006).
87. D. S. Ivanov, B. Rethfeld, G. M. O'Connor et al., Appl. Phys. A **92**, 791 (2008).
88. D. S. Ivanov, Zh. Lin, B. Rethfeld et al., J. Appl. Phys. **107**, 013519 (2010).
89. А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, Л. В. Селезнев и др., ЖЭТФ **143**, 403 (2013).

Формирование наноразмерных струек и капель ультракоротким лазерным импульсом при фокусировке на дифракционном пределе

Н. А. Иногамов⁺¹⁾, В. В. Жаховский

⁺Институт теоретической физики им. Ландау РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Духова Росатом, 127055 Москва, Россия

Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

Поступила в редакцию 9 июня 2014 г.

Построена новая модель и проведены расчеты формирования нанокapель при воздействии ультракороткого лазерного импульса на тонкую (10–100 нм) пленку золота, напыленную на стеклянную подложку. Воздействие лазера приводит к плавлению пленки в области пятна нагрева и ее термомеханическому отскоку от подложки. Отлетающая пленка принимает форму купола из-за снижения температуры в направлении от центра пятна нагрева. С помощью теоретической модели удалось объяснить формирование нанокapель. Нами установлено, что, во-первых, в случае пленки из золота имеет место сильное снижение скорости отскока пленки от стекла, поскольку акустический импеданс золота намного больше, чем у стекла. Во-вторых, нанокapли образуются вследствие капиллярной фокусировки вещества, которая заключается в появлении направленной к оси симметрии купола компоненты тормозящей силы. Поверхностное натяжение становится динамически существенным в силу указанного сильного снижения скорости отскока от стекла и в силу малости диаметра фокального пятна ($D \sim 1$ мкм), определяемого дифракционным пределом оптического излучения.

DOI: 10.7868/S0370274X14130025

Фемтосекундные лазерные импульсы длительностью ~ 10 – 100 фс применяются для фабрикации трехмерных решетчатых нанокomпозитов с помощью техник лазерного переноса вещества LIFT (*laser-induced forward transfer*) и LIBT (*laser-induced backward transfer*) (см. Wikipedia). Объемные нанокomпозиты изготавливаются для устройств метаоптики, наноплазмоники, биомедицины и наногидравлики. Схема LIFT проста. Имеется зазор между донорской прозрачной пластинкой и принимающей (ресивер) пластиной. На донор напылена пленка золота (Au) толщиной d . Лазерный луч проходит через донор и освещает пленку Au. С помощью фокусировки достигаются минимальные размеры пятна нагрева, $D \sim 1$ мкм. В важных работах [1–5] были подобраны параметры (энергия лазерного импульса E , диаметр пятна D и толщина пленки d), при которых на вершине купола образуется наноструйка. В замечательных экспериментах [1] продемонстрирована возможность манипулирования верхней струйкой и процессом ее распада на капли. Показано, что можно собирать столбики из последовательно вылетевших капель на ресивере.

Управление процессом осуществляется посредством вариации параметров E , D и d в одиночном лазерном выстреле.

Разумеется, для оптимизации технологии необходимо понимать физику имеющих место явлений. На сегодняшний день предложено две модели отслойки или откола пленки от стекла. К сожалению, они не объясняют образование капель. В одной модели [6–8] используется молекулярная динамика. Смещением границы между стеклом и металлом пренебрегается (стекло – “жесткая” стенка). Вкладывается такая энергия E , чтобы произошло плавление пленки в пятне нагрева (в [6, 7] рассматривается никель, в [8] – золото). В другой модели [9] золото в пятне нагрева остается твердым. При этом пленка в горячем пятне, расширившись в тангенциальном (т.е. вдоль границы с подложкой) направлении в результате нагрева, упирается в холодную окружающую пленку. Это приводит к упругому выгибанию пленки относительно стеклянной подложки, которая считается неподвижной.

Представим нашу модель, из которой следует ясная картина формирования микрокапель и отрыва купола. Поверхностное натяжение жидкого золота в довольно широком диапазоне температур составля-

¹⁾e-mail: nailinogamov@gmail.com

ет $\sigma \approx 1070$ дин/см [10]. (Укажем для сравнения, что для воды при 25°C $\sigma = 72$ дин/см.) В случае жидкого купола, отрывающегося от стекла, капиллярное торможение вещества купола составляет

$$g \approx 4\sigma/\rho dR = 3.2 \cdot 10^{11}/d_{70}R_{1\mu} [\text{см/с}^2], \quad (1)$$

где $d_{70} = d/70$ нм – начальная толщина пленки, $R_{1\mu} = R/1$ мкм – радиус кривизны купола; $\rho = \rho_0 = 19.3$ г/см³ – начальная плотность Au. Капиллярная разность давлений для пузырька диаметром 1 мкм равна 90 атм. Торможение (1) остановит купол на расстоянии z_{stp} , если усредненная по нормали к пленке (координата z) скорость пленки после отделения от стеклянной подложки будет равна

$$v_z \approx \sqrt{2gz_{\text{stp}}} = 56\sqrt{z_{05\mu}/d_{70}R_{1\mu}} [\text{м/с}], \quad (2)$$

где $z_{05\mu} = z_{\text{stp}}/0.5$ мкм. В (2) принято $z_{\text{stp}} \sim D$.

При начальных скоростях полета, существенно превышающих капиллярный масштаб (2), происходит отрыв купола от холодной части пленки, располагающейся вне пятна нагрева. Поэтому важно подсчитать скорость v_z отскока пленки золота от стеклянной подложки и сравнить ее с масштабом (2).

Скорость $v_z(F_{\text{abs}})$ монотонно возрастает с ростом поглощенного золотом флюенса F_{abs} [мДж/см²] (F – это энергия на единицу площади поверхности). Имеется минимальное значение флюенса F_{abs} , необходимое для плавления пленки толщиной $d \sim 70$ нм. Кроме F_{abs} , величина v_z зависит от отношения акустических импедансов z_{Au} (металла, из которого изготовлена пленка) и z_{gl} (стекла, составляющего подложку). Адгезия золота на стекле является слабой. Если вместо стекла располагается жесткая стенка ($z_{\text{gl}} = \infty$) то скорость v_z ограничена снизу пределом ≈ 150 м/с, который определяется условием плавления (см. текст ниже). При $z_{\text{gl}} = \infty$ скорость v_z максимальна (разумеется, при фиксированном значении F_{abs}). Если $z_{\text{gl}} = 0$ (вакуум с двух сторон пленки), то разлет пленки примерно симметричен в обе стороны, поскольку глубина прогрева золота (120–140 нм [11]) на двухтемпературной (2T) [12] стадии существенно больше, чем толщина (20–70 нм) пленок в устройствах LIFT. Следовательно, $v_z \approx 0$ при $z_{\text{gl}} = 0$. Именно малый импеданс стекла позволяет и расплавить пленку, и уменьшить скорость v_z до капиллярных значений (2).

На рис. 1 показана фазовая диаграмма золота [13, 14]. Вертикальная прямая соответствует изохоре начальной плотности ρ_0 . На рис. 2 представлена изохорическая зависимость давления от внутренней энергии, $p(E_{\text{int}}, \rho = \rho_0)$. Точки m3, S, Liq на рис. 1 и 2 имеют следующий смысл:

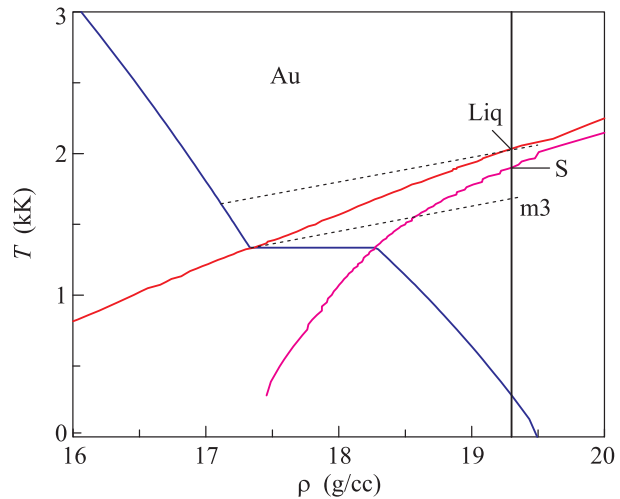


Рис. 1. (Цветной онлайн) Бинодаль (синяя кривая с изломом тройной точки), солидус S и ликвидус Liq золота. После окончания 2T-стадии на временах порядка звукового масштаба времени t_s можно пренебречь теплопроводностью. Поэтому приблизительно расширение золота, нагретого изохорически (т.е. быстро), происходит вдоль изэнтроп, показанных штриховыми линиями. Нас интересует интервал температур на кривой кипения немного выше температуры плавления 1337 К. Кривой кипения называется отрезок бинодали выше тройной точки

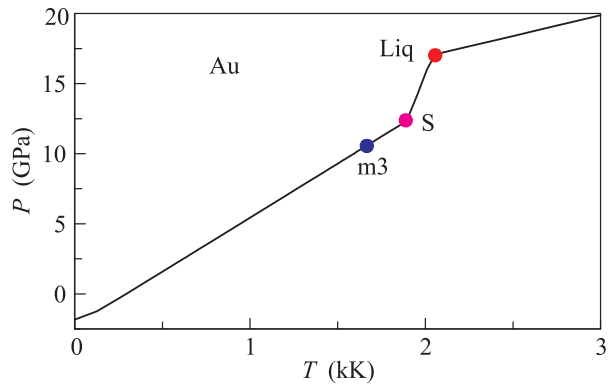


Рис. 2. Зависимость $p(E_{\text{int}}, \rho = \rho_0)$ давления от энергии на изохоре ρ_0 , которая относится к плотности 19.3 г/см³. Точки m3, S и Liq имеют тот же смысл, что и на рис. 1

• m3 – пересечение изэнтропы, вышедшей из левой точки отрезка тройной точки, и изохоры $\rho = \rho_0$. Достижение точки m3 необходимо для того, чтобы полностью расплавить золото. Этой точке соответствует минимальное значение флюенса F_{abs} , при котором еще имеет место полное плавление пленки;

- s – пересечение изохоры и солидуса;
- liq – пересечение изохоры и ликвидуса. Сольдус и ликвидус окаймляют полосу двухфазной области плавления на рис. 1.

Глубина прогрева толстого образца Au на 2T-стадии составляет $d_T = (120–140)$ нм [11]. Толщина пленки d в условиях экспериментов [1–5] существенно меньше. При условии $d \ll d_T$ мало и различие между случаями, когда пленка освещается через стекло-донор (LIFT) и через ресивер и вакуумный промежуток между пленкой и ресивером (LIBT). На 2T-стадии электронная тепловая волна прогревает пленку быстро (за несколько пикосекунд). В золоте 2T-стадия [11] продолжается 5–7 пс.

Звуковая релаксация, во время t_s которой звук пробегает пленку, длится намного дольше, чем 2T-стадия: $t_s = d/c_s = 23$ пс при $d = 70$ нм ($c_s = \sqrt{K/\rho_0}$, объемный модуль $K = 180$ ГПа). Следовательно, при анализе отделения (откола) пленки от стекла длительностью 2T-стадии можно пренебречь. Давления $\sim 11–17$ ГПа, соответствующие интервалу вложений энергий в пленку между точками m3 и Liq на рис. 1 и 2, намного меньше объемного модуля K . Поэтому задачу можно рассмотреть в акустическом приближении. На рис. 3 изображена z - t -диаграмма одномерно-

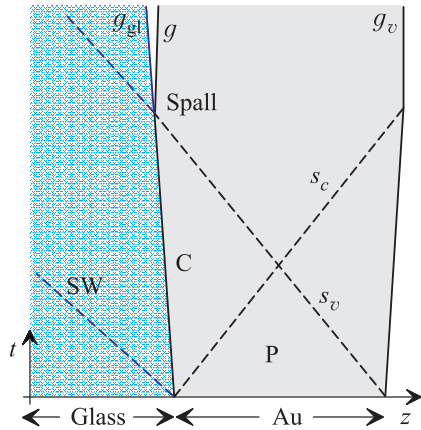


Рис. 3. Динамика пленки (Au) и стекла (glass) в пренебрежении длительностью 2T-стадии и прочностью механической связи золота со стеклом $p_{coh} = 0$

го (1D) движения волн по толщине пленки. Толщина пленки d мала по сравнению с диаметром пятна освещения D . Соответственно одномерное приближение пригодно до этапа сильного искривления пленки через несколько наносекунд после откола пленки от стекла.

На рис. 3 движение волн стартует с момента быстрого нагрева $t = 0$, поскольку мы пренебрегли дли-

тельностью 2T-стадии. При $t > 0$ начинается расширение в вакуум границы пленки g_v . Чуть позже формируется слабая ударная волна (УВ) SW в стекле. Перед этой УВ находится область покоя, которая “не знает” о произошедшем лазерном воздействии (см. рис. 3). В пленку от контакта “с” золото-стекло бежит волна разрежения s_c . В области между SW и характеристикой s_c давление p_c и скорость потока u_c в золоте и стекле примерно однородны и одинаковы. Скорость u_c равна скорости контакта C на этом этапе движения. Запишем условия распада скачка давления на контакте между быстро (мгновенно) нагретым золотом и стеклом: $p_c = z_{gl}|u_c|$ в стекле, $p - p_c = z_{Au}|u_c|$ в Au. Акустические импедансы стекла (рутех, 2.23 г/см³, $c_{gl} = 3.9$ км/с) и золота есть $z_{gl} = \rho_{gl}c_{gl} = 0.87 \cdot 10^6$ г·см⁻²·с⁻¹, и $z_{Au} = \rho_0 c_s = 5.9 \cdot 10^6$ г·см⁻²·с⁻¹. На рис. 3 показана треугольная область P, в которой давление равно p , а золото покоится.

Пусть давления p принадлежат интересующему нас диапазону: $p = (11–17)$ ГПа. Такие давления возникают при поглощении пленкой энергии F_{abs} немного выше порога плавления (см. рис. 1 и 2). Решая систему уравнений относительно p_c и u_c , находим

$$p_c = p z_{gl} / (z_{Au} + z_{gl}) = z_{gl} u_c = (1.6–2.5) \text{ ГПа}, \quad (3)$$

$$u_c = p / (z_{Au} + z_{gl}) = (160–250) \text{ м/с}. \quad (3)'$$

По прибытии характеристики s_v на контакт C пленка отрывается от стекла (когезионная прочность контакта мала). Точка Spall на рис. 3 относится к моменту отрыва. В данный момент контакт C расщепляется на расходящиеся друг от друга границу стекла g_{gl} (слева) и границу пленки золота g (справа). В этом заключается откол или отскок пленки от стекла.

За время контакта со стеклом, $t = (0–t_{Spall})$, $t_{Spall} = t_s$, пленка набирает импульс $i = \int_0^{t_s} p_c dt$. Соответствующая скорость пленки равна

$$v_z = \frac{i}{\rho_0 d} = \frac{p_c t_s}{\rho_0 d} = \frac{p_c}{z_{Au}} = \frac{u_c z_{gl}}{z_{Au}} = (24–37) \text{ м/с}. \quad (4)$$

Как мы видим, из-за большого отношения $z_{Au}/z_{gl} = 6.8$ (“мягкость” стекла) давление p_c (3) мало по сравнению с давлением $p = (11–17)$ ГПа. В данном смысле стекло мало отличается от вакуума. При этом разлет пленки приблизительно симметричен: скорость u_c (3)' примерно равна скорости разлета золота в сторону вакуума, p/z_{Au} . В силу указанной приблизительно симметрии разлета скорость центра масс v_z (4) мала по сравнению со скоростью расширения u_c (3)'. В случае, когда вместо стекла стоит жесткая стенка, скорость $v_z = p/z_{Au} \approx u_c$ намного больше, чем величина (4).

Именно вследствие большой величины отношения импедансов $z_{Au}/z_{gl} = 6.8$ начальная скорость пленки (4) попадает в интервал значений (1), (2), где становится существенным поверхностное натяжение.

После отрыва пленки от стекла уравнения 1D-гидродинамики (3), (4) заменяются на уравнения, которые описывают вспучивание пленки и формирование купола. Формирование купола происходит из-за того, что распределение поглощенной энергии F_{abs} неоднородно: оно имеет максимум в центре пятна нагрева и убывает до нуля при удалении от него. Центру пятна соответствует вершина купола. Скорость $v_z(F_{abs})$ в центре максимальна.

Запишем уравнения движения пленки с учетом капиллярных эффектов. Пусть пленка является тонкой, $d \ll D$, а ее положение задается параметрически: $r(a, t)$, $z(a, t)$, где a – лагранжева координата, $r(a, t = 0) = a$, $z(a, t = 0) = 0$. Момент $t = 0$ соответствует моменту откола пленки (значение $t = 0$ относится к точке Spall на рис. 3). Эволюция пленки происходит на временах $D/v_z \sim 10$ нс, громадных по сравнению с определенным выше звуковым масштабом $t_s = d/c_s \sim 10$ пс. Поэтому длительностью стадии силового взаимодействия пленка–стекло можно пренебречь. После откола пленки от подложки набор импульса за счет механической отдачи стекла прекращается. Далее локальное изменение импульса пленки определяется только капиллярной силой, которая тормозит пленку.

Соответствующая система уравнений имеет вид

$$\ddot{r} = -Az', \quad \ddot{z} = Ar', \quad A = v_\sigma^2 \left(\frac{1}{R} + \frac{z'}{rk} \right) \frac{r}{a}, \quad (5)$$

где $v_\sigma = \sqrt{4\sigma/\rho_0 d} \approx 56$ м/с – капиллярный масштаб, $k = \sqrt{r'^2 + z'^2}$, $R = k^3/(z''r' - r''z')$ – кривизна осесимметричного купола в плоскости (rz) , $\dot{r} \equiv \partial r/\partial t$, $r' \equiv \partial r/\partial a$. Осесимметричный закон сохранения массы, $2\pi r ds \mu = 2\pi a da \rho_0 d$, представляет собой уравнение неразрывности в лагранжевом описании. Здесь $ds = k da$ – длина дуги, μ [г/см²] – локальное текущее значение поверхностной плотности, ρ_0 и d – начальные плотность и толщина напыленной пленки. Второе слагаемое в скобках в (5) связано с кривизной в плоскости, проходящей через нормаль к точке (r, z) и перпендикулярной плоскости (rz) . Соответствующий радиус кривизны определяется расстоянием от точки (r, z) до точки пересечения нормали с осью z . В плоском случае вторая кривизна пропадает и множитель A в уравнениях (5) принимает простой вид: $A = v_\sigma^2/R$. Купол возле оси симметрии является выпуклым. Поэтому в (5) $\ddot{r} < 0$, $\ddot{z} < 0$. Таким образом,

имеют место торможение купола ($\ddot{z} < 0$) и фокусировка ($\ddot{r} < 0$) лагранжевых частиц пленки к оси z .

Типичный пример расчета показан на рис. 4 и 5. В начальный момент, когда пленка еще находится

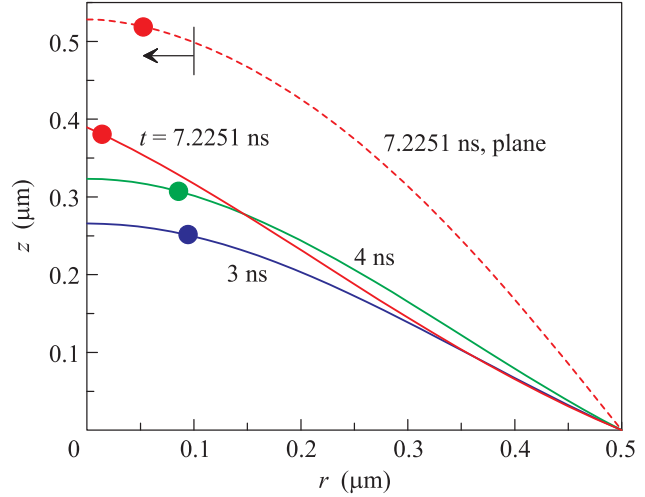


Рис. 4. Подъем купола и его торможение поверхностным натяжением. В момент $t = 7.2251$ нс начинается самопересечение поверхности в осесимметричном случае. Маркеры отслеживают фокусировку к оси симметрии лагранжевой частицы $a = 100$ нм. Штриховая кривая – форма купола в случае плоской геометрии при таких же значениях параметров v_0 , D , R_L , d , σ . Стрелкой показано смещение лагранжевой частицы по горизонтальной координате

на подложке, задается распределение вертикальной компоненты скорости:

$$v(a) = v_0 \frac{\exp(-a^2/R_L^2) - \exp[-(D/2)^2/R_L^2]}{1 - \exp[-(D/2)^2/R_L^2]}. \quad (6)$$

Распределение (6) соответствует гауссову лазерному пучку с радиусом R_L на поверхности пленки. В расчете на рис. 4 и 5 на окружности с радиусом $a = D/2 \sim R_L$ жидкая пленка контактирует с твердой, смещением которой мы будем пренебрегать по сравнению с большими смещениями жидкого участка пленки. Величина v_0 задает начальную скорость на оси пучка. Ее значения брались порядка капиллярных скоростей (2) и v_σ из (5). На рис. 4 и 5 представлена эволюция купола в случае $R_L = D/2 = 0.5$ мкм, $v_0 = 100$ м/с, $d = 70$ нм, $\sigma = 1070$ дин/см. Маркерами на рис. 4 показаны последовательные положения лагранжевой частицы с координатой $a = 100$ нм. В начальный момент эта частица находится на расстоянии 100 нм от центра. Видно, как за счет направленной к центру радиальной компоненты скорости (см.

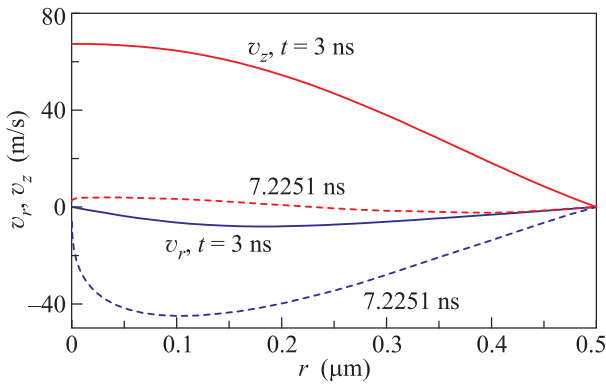


Рис. 5. Снижение вертикальной скорости v_z и рост (по абсолютной величине) горизонтальной скорости v_r вследствие капиллярной фокусировки. Начальное значение скорости в вершине равно 100 м/с. В этом процессе происходит постепенное укрупнение градиента $\partial v_r / \partial r$ на профиле радиальной скорости. В момент самопересечения $t_{\text{jet}} = 7.2251$ нс (см. рис. 4) градиент становится сингулярным на оси (“опрокидывание” профиля скорости v_r)

рис. 5) происходит приближение лагранжевой частицы к оси z .

В плоском случае суммарная кривизна меньше. Поэтому торможение купола идет медленнее, чем в осесимметричном случае (ср. две кривые, соответствующие $t = 7.2251$ нс, на рис. 4). (Разумеется, в плоском случае горизонтальная координата – это не цилиндрический радиус). Плоская геометрия соответствует вытянутому фокальному пятну, созданному путем освещения через щель [4]. При этом ширина пятна D много меньше его длины. Плоская геометрия представляет экспериментальный интерес [4, 8]. “Опрокидывание” профиля радиальной скорости $v_r(r, t)$ в этом случае происходит несколько позже. На рис. 4 в цилиндрической геометрии момент опрокидывания $t_{\text{jet}} = 7.2251$ нс, а в плоской – 8.9133 нс. В этот момент на оси z появляется бесконечная производная профиля скорости v_r . Приближение к моменту “опрокидывания” для осесимметричного случая показано на рис. 5. В момент “опрокидывания”/самопересечения лагранжевы частицы пленки, до этого находившиеся на конечном расстоянии от центра практически одновременно прибывают на ось симметрии. При этом вблизи оси толщина пленки резко увеличивается. В данной окрестности уравнения тонкой пленки (5) становятся неприменимыми.

Уравнения (5) справедливы, когда пленка является тонкой. В экспериментах [1–5] начальное зна-

чение малого параметра d/D составляет несколько процентов. Поэтому ранняя эволюция описывается системой уравнений (5). Как уже было сказано, в центральной области купола происходит накопление массы, толщина пленки растет и система (5) перестает быть применимой вблизи момента “опрокидывания”. Это происходит вследствие фокусировки расплавленного вещества пленки за счет торможения поверхностным натяжением. Мы использовали молекулярную динамику (МД), чтобы понять, во-первых, как малая, но конечная толщина влияет на точность описания динамики пленки (речь идет о проверке системы (5)), и, во-вторых, чтобы выяснить, каким образом эволюционирует купол после того, как в его центре формируется утолщение. В результате становится ясно, что происходит в опытах [1–5].

На рис. 6 и 7 приведено сравнение расчета (5) и МД на нелинейной стадии, когда купол существен-

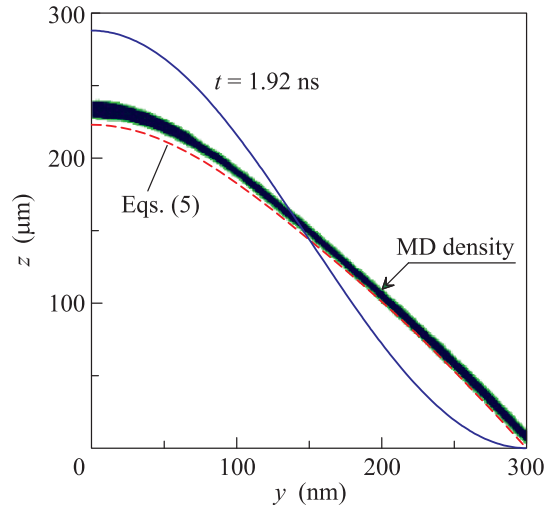


Рис. 6. (Цветной онлайн) Сопоставление МД-расчета (MD density) с решением системы уравнений (5) (красная линия). В МД-случае пленка имеет конечную толщину

но отличается от того купола, который наблюдался бы в случае чисто инерционного полета пленки. В инерционном режиме скорость жидких частиц равна начальной и не меняется с течением времени. В качестве начального было выбрано распределение скорости вида $v_z(y, t = 0) = v_0 \cos^2(\pi y/D)$, $v_y \equiv 0$, где $v_0 = 150$ м/с, $D = 600$ нм, $d = 10$ нм. Рассматривался плоский случай с горизонтальной и вертикальной координатами (y, z) . При МД-моделировании использовался EAM (embedded atom model) потенциал золота [15]. Этот потенциал дает коэффициент поверхностного натяжения $\sigma = 530$ дин/см, что меньше, чем

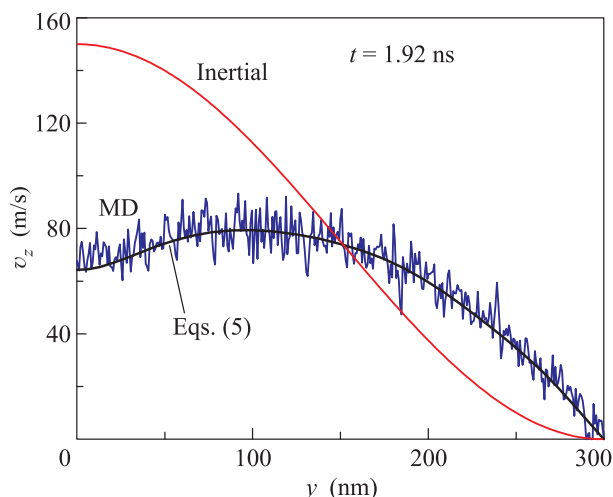


Рис. 7. (Цветной онлайн) Сопоставление МД-расчета (флуктуирующая синяя кривая) с решением системы уравнений (5) (черная кривая)

экспериментальная величина $\sigma = 1070$ дин/см, приведенная в работе [10]. В МД-расчете края пленки с координатами $|y| > 300$ нм были закреплены. Изначально кристаллическая пленка была нагрета термостатом до температуры 1.6 кК и расплавилась. Затем в течение нескольких десятков пикосекунд пленка приводилась термостатом в состояние термодинамического равновесия при температуре 1.6 кК. После этого термостат выключался и к скоростям атомов пленки добавлялась вертикальная скорость согласно указанному выше распределению. При расчете системы уравнений (5) было принято значение $\sigma = 0.747 \cdot 530$ дин/см. Форма купола в инерционном случае (при $\sigma = 0$) имеет вид $z = v_z(y, t = 0)t$. Она показана на рис. 6 красной кривой Inertial. Остальные кривые на рис. 6 учитывают поверхностное натяжение. Видно, как поверхностное натяжение уменьшает кривизну поверхности (ср. кривую Inertial с другими кривыми).

Торможение купола проиллюстрировано на рис. 7 (ср. инерционную кривую – полет с начальной скоростью $v_z(y, 0)$ – и капиллярные кривые). Скорость вершины купола снизилась в 2.4 раза по сравнению с начальной скоростью (см. также рис. 5). Профиль скорости теряет свою начальную монотонность: в его центре образуется провал. Рис. 6 и 7 соответствуют промежуточному моменту времени, когда влияние капиллярного эффекта уже существенно, а самопересечений поверхности еще нет: $t = 1.92$ нс меньше, чем $t_{\text{jet}} = 3.194$ нс, для выбранных значений параметров. Представленные на рис. 6 и 7 результаты сви-

детельствуют о том, что система (5) хорошо описывает динамику пленки, оторвавшейся от подложки.

Постепенно масса пленки, находящейся в движении, концентрируется в окрестности вершины купола. Образуется массивная капля (см. рис. 8, момент времени $t = 5.18$ нс). При выбранных значениях на-

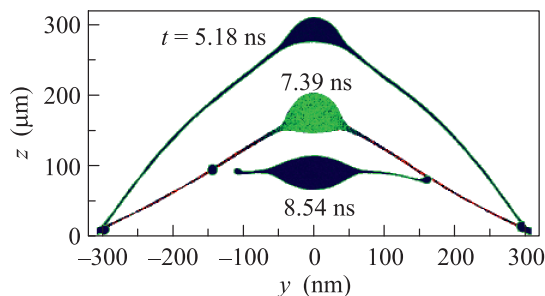


Рис. 8. Стеkanie расплава по пленке в центр, формирование вершинной капли и разрушение пленки. Причиной разрушения является перераспределение массы, приводящее к уменьшению толщины пленки вне капли, которая находится в вершине

чальной толщины пленки d , диаметра D и скорости v_0 капля формируется на стадии торможения движения вверх. Остановка движения по вертикали и поворот назад происходят на временах $t \approx (3-6)$ нс. При этом вершина поднимается на высоту примерно равную радиусу ($D/2 = 300$ нм) дырки в пленке на подложке (D – диаметр дырки). На временах $t > 6$ нс начинается движение купола в обратную сторону (в сторону подложки).

В момент $t = 7.939$ нс происходит первый разрыв пленки в точке $y = -255$ нм (см. рис. 8). Ширина разрыва быстро возрастает, а на его берегах формируются округлые капельки. В момент $t = 8.227$ нс справа от центра происходит второй разрыв пленки в точке $y = 234$ нм. Наконец, в момент $t = 8.34$ нс немного правее первого разрыва в точке $y = -160$ нм пленка разрывается еще раз. В результате образуются две летящие капли: крупная капля в центре, которая продолжает движение купола и летит вниз, и маленькая слева. Маленькая капля собирает массу между первым и третьим разрывами. Она летит вверх и направо под углом 60° к нормали со скоростью 170 м/с. Капли на правом и левом краях формируют капиллярный валик вокруг дырки в холодной пленке. Центральная капля, образовавшаяся в момент $t = 8.34$ нс, вначале имеет весьма неправильную (далекую от окружности) форму. Это связано с остатками оболочки купола (“жгутами”) (см. рис. 8). Капля совершает сложные капиллярные осцилляции и постепенно принимает более округлую форму. Эта

капля ударяется в подложку и застывает на ней. Отметим, что в диапазоне скоростей v_0 между 150 и 300 м/с происходит изменение направления вылета капель. При небольших скоростях центральная капля летит в подложку (донор). При повышенных же скоростях капля или капли горячего расплава металла вылетают вверх, в сторону ресивера.

В настоящей работе с помощью нового подхода (уравнения 5) и МД моделирования получено объяснение механизма формирования капель в вершине купола. Данный подход учитывает, во-первых, реакцию стекла на термомеханическое расширение облученной золотой пленки и, во-вторых, капиллярное торможение и фокусировку жидких частиц купола. Показано, что эволюция купола до его разрушения тянется от единиц до десятков наносекунд, а его смещение составляет сотни нанометров. Эти данные хорошо согласуются с опытами [1]. Выяснена важная роль гашения скорости отскока пленки от подложки за счет отдачи в “мягкое” стекло. Установлено, что именно энергосложение, приводящее к плавлению пленки, дает подходящие значения давлений и скоростей. Ранее было неясно, каким образом отделившаяся от подложки и летящая вверх пленка может образовывать наблюдаемые в опытах капли на подложке. Расчет, представленный на рис. 6–8, позволяет разрешить эту загадку (поворот капли назад). Отметим, что в такой капле сосредоточена основная часть массы пленки, которая оторвалась от подложки.

Авторы благодарят РНФ 14-19-01599. МД-расчеты были выполнены на суперкомпьютере Ломоносов, установленном в МГУ им. М.В.Ломоносова.

1. C. Unger, J. Koch, L. Overmeyer, and B. N. Chichkov, *Opt. Express* **20**(22), 24864 (2012).
2. Y. Nakata, T. Okada, and M. Maeda, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42**, L1452 (2003).
3. F. Korte, J. Koch, and B. N. Chichkov, *Appl. Phys. A* **79**, 879 (2004).
4. A. I. Kuznetsov, J. Koch, and B. N. Chichkov, *Appl. Phys. A* **94**, 221 (2009).
5. Y. Nakata, N. Miyanaga, and T. Okada, *Appl. Surf. Sci.* **253**, 6555 (2007).
6. D. S. Ivanov, B. Rethfeld, G. M. O'Connor, T. J. Glynn, A. N. Volkov, and L. V. Zhigilei, *Appl. Phys. A* **92**, 791 (2008).
7. D. S. Ivanov, Zh. Lin, B. Rethfeld, G. M. O'Connor, T. J. Glynn, and L. V. Zhigilei, *J. Appl. Phys.* **107**, 013519 (2010).
8. D. S. Ivanov, A. I. Kuznetsov, V. P. Lipp, B. Rethfeld, B. N. Chichkov, M. E. Garcia, and W. Schulz, *Appl. Phys. A* **111**, 675 (2013).
9. Y. P. Meshcheryakov and N. M. Bulgakova, *Appl. Phys. A* **82**, 363 (2006).
10. E. B. Webb III and G. S. Grest, *Phys. Rev. Lett.* **86**(10), 2066 (2001).
11. B. J. Demaske, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, and I. I. Oleynik, *Phys. Rev. B* **82**, 064113 (2010).
12. S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perelman, *Sov. Phys. JETP* **39**(2), 375 (1974).
13. A. V. Bushman, G. I. Kanel', A. L. Ni, and V. E. Fortov, *Intense Dynamic Loading of Condensed Matter*, Taylor Francis, London (1993).
14. <http://teos.ficp.ac.ru/rusbank/>.
15. V. V. Zhakhovskii, N. A. Inogamov, Yu. V. Petrov, S. I. Ashitkov, and K. Nishihara, *Appl. Surf. Sci.* **255**, 9592 (2009).

Laser-Induced Translative Hydrodynamic Mass Snapshots: Noninvasive Characterization and Predictive Modeling via Mapping at Nanoscale

X. W. Wang,¹ A. A. Kuchmizhak,^{1,2,3,*} X. Li,¹ S. Juodkazis,^{1,4} O. B. Vitrik,^{2,3} Yu. N. Kulchin,³ V. V. Zhakhovsky,^{5,6} P. A. Danilov,^{3,7} A. A. Ionin,⁷ S. I. Kudryashov,^{3,7,8} A. A. Rudenko,⁷ and N. A. Inogamov^{6,5}

¹*Center for Micro-Photonics, Swinburne University of Technology,
John Street, Hawthorn 3122, Victoria, Australia*

²*School of Natural Sciences, Far Eastern Federal University, Vladivostok 690041, Russia*

³*Institute of Automation and Control Processes, Far Eastern Branch,
Russian Academy of Science, Vladivostok 690041, Russia*

⁴*Melbourne Centre for Nanofabrication, ANFF, 151 Wellington Road, Clayton VIC 3168, Australia*

⁵*Dukhov Research Institute of Automatics, ROSATOM, Moscow 127055, Russia*

⁶*Landau Institute for Theoretical Physics, Russian Academy of Sciences, Chernogolovka 142432, Russia*

⁷*Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences, Moscow 119991, Russia*

⁸*ITMO University, St. Petersburg 197101, Russia*

(Received 4 May 2017; revised manuscript received 3 August 2017; published 25 October 2017)

Subwavelength structures (meta-atoms) with artificially engineered permittivity and permeability have shown promising applications for guiding and controlling the flow of electromagnetic energy on the nanoscale. Ultrafast laser nanoprinting emerges as a promising single-step, green and flexible technology in fabricating large-area arrays of meta-atoms through the translative or ablative modification of noble-metal thin films. Ultrafast laser energy deposition in noble-metal films produces irreversible, intricate nanoscale translative mass redistributions after resolidification of the transient thermally assisted hydrodynamic melt perturbations. Such mass redistribution results in the formation of a radially symmetric frozen surface with modified hidden nanofeatures, which strongly affect the optical response harnessed in plasmonic sensing and nonlinear optical applications. Here, we demonstrate that side-view electron microscopy and ion-beam cross sections together with low-energy electron x-ray dispersion microscopy provide exact information about such three-dimensional patterns, enabling an accurate acquisition of their cross-sectional mass distributions. Such nanoscale solidified structures are theoretically modeled, considering the underlying physical processes associated with laser-induced energy absorption, electron-ion energy exchange, acoustic relaxation, and hydrodynamic flows. A theoretical approach, separating slow and fast physical processes and combining hybrid analytical two-temperature calculations, scalable molecular-dynamics simulations, and a semianalytical thin-shell model is synergistically applied. These advanced characterization approaches are required for a detailed modeling of near-field electromagnetic response and pave the way to a fully automated noninvasive in-line control of a high-throughput and large-scale laser fabrication. This theoretical modeling provides an accurate prediction of scales and topographies of the laser-fabricated meta-atoms and metasurfaces.

DOI: 10.1103/PhysRevApplied.8.044016

I. INTRODUCTION

Precise high numerical-aperture (NA) nanoscale laser ablation of thin metal films, using short and ultrashort laser pulses (full width at half-intensity maximum $\tau_L < 10$ ps), is a key enabling physical process in emerging large-scale technologies in high-throughput MHz- [1–4] or GHz-rate [5] processing of thin-film transistors [6], scribing thin-film solar cells [7], ablative fabrication, and laser-induced forward-transfer (LIFT) printing of advanced plasmonic and dielectric nanophotonic metasurfaces and circuits [8–17]. In comparison to short laser pulses ($\tau_L > 10$ ps), the ultrashort ones are broadly used during such precise

ablation, holding a promise of providing an ultimate spatial resolution, despite the underlying more intense response of the electron subsystem to laser exposure with dramatically higher electron-lattice temperature (for $\tau_L < 1$ ps) and pressure gradients, resulting in intense nanoscale hydrodynamic flows and ultrafast quenching of corresponding transient melt configurations—e.g., a nanodroplet, separating from a nanojet [18].

Radial nanoscale mass distributions inside frozen center-symmetric nanostructures were previously demonstrated to be inhomogeneous with intense hydrodynamic gradient-driven melt redistributions in the melt stage and even some emerging hidden subsurface features (e.g., counterjets, cavities) [19–26]. A number of focused studies were devoted to separation dynamics of molten spherical

* alex.iacp.dvo@mail.ru

nanodroplets from a laser-induced nanojet [18] and their deposition on an acceptor substrate [27] in the context of the promising LIFT-printing technology [10]. Meanwhile, till now nano- and microscale resolidified structures on thin supported metallic films were only qualitatively or semi-quantitatively visualized in terms of their internal structure by top- or side-view scanning electron microscopy (SEM), without visualization of hidden nanoelements and quantitative acquisition of their mass distribution parameters (film or membrane relief profile or metal thickness, shape, etc.). The latter parameters were demonstrated to be crucial in supporting the propagation of surface plasmon-polaritons in surface arrays of laser-induced nano- or microstructures and managing their related surface electromagnetic nodes (hot spots), important for various applications as surface-enhanced Raman scattering and photoluminescence enhancement, plasmonic coloration, and nonlinear optical applications [12,17,28]. Hence, highly informative, non-invasive quantitative nanocharacterization procedures are required for the comprehensive acquisition of mass distributions in such nanoelements of plasmonic metasurfaces produced by ultrafast laser printing (preferably via an inline inspection).

Alternatively, molecular-dynamics (MD) and hydrodynamics (HD) simulations can potentially provide a realistic detailed description of the underlying spatiotemporal dynamics of the laser-induced nanoscale hydrodynamic flows, enlightening the corresponding physical mechanisms [26,29–31]. Specifically, several previous MD studies [32–34] considered an initial stage of fs-laser-induced separation of a thin metal film from a substrate caused by a negative pressure at the film-substrate contact boundary, while much later stages, when the formation of a central nanojet occurs, were not achieved in these simulations. Meanwhile, forming and development of multiple nanojets were simulated during two-temperature-model- (TTM) MD (TTM-MD) studies of fs-laser spallation [35]. Also, a rather complicated process of formation of subsurface voids (a nanoporous subsurface layer) on the fs-laser irradiated metal surface [20,25,36,37] is modeled, using combined theoretical approaches based on Monte Carlo–MD [20] or TTM-MD codes [25,26,33,34,38].

Despite these remarkable demonstrations of the predictive theoretical capability, a substantial detailed experimental input is usually required as a starting point for the comprehensive justification of such theoretical models and comparative quantitative verification of their results, to enable future important quantitative predictions and optimization of experimental parameters. In this work, we present experimental procedures based on the SEM inspection of nanoscale focused-ion-beam (FIB) cuts and energy-dispersive x-ray fluorescence (EDX) nanoscale profiling, for nanoscale invasive and noninvasive characterization of mass-density distributions within individual radially symmetric topological surface structures—separate nanobumps

and jets on nanobumps, produced by single-shot ablation of 50-nm-thick glass-supported gold films by tightly focused fs-laser pulses at variable pulse energies. These structures are fabricated to reveal quenched configurations of melt, yielding from irreversible nanoscale translative hydrodynamic flows and nanoscale heat conduction, by means of the developed characterization procedures. By taking into account all underlying physical processes associated with laser-induced energy absorption, electron-ion energy exchange, acoustic relaxation, and hydrodynamic flows, the theoretical approach based on the separation of the slow and fast physical processes and combining hybrid analytical two-temperature calculations, scalable molecular-dynamics simulations, and the semianalytical thin-shell model is tested in terms of its predictive capabilities regarding such nanoscale resolidified morphologies.

II. EXPERIMENTAL STUDY OF NANOSCALE TRANSLATIVE MASS REDISTRIBUTIONS

To experimentally reveal the initial stage of metal film blistering from its substrate under the tightly focused fs-laser pulse irradiation, as well as to follow the subsequent evolution of the molten material through nanoscale hydrodynamic flows and quenching (resolidification) of transient nanofeatures—from the parabola-shaped nanobumps to the small nanojets, their cross-sectional cuts are prepared, using Ga⁺-ion FIB milling (Raith IonLINE). To do this, an *e*-beam-evaporated 50-nm-thick Au film, covering a silica glass substrate, is first patterned with well-ordered arrays of different surface structures—smaller and larger nanobumps; with small nanojets atop for the larger fluences [Figs. 1(a)–1(e)]. The spatial period of arrays is set 2 μ m.

The small structures are formed in the fluence range below the thresholds for nanojet and hole appearance [highlighted by green and red colors in Fig. 1(h), respectively]. Studying the small structures can shed light on the reasons of material redistribution during their initial formation stage, because the main governing processes, including melting, material flow, and recrystallization, are triggered at such a time scale. Additionally, these experimental results can be used to justify the previously suggested theoretical models [30,34,41,42].

For laser patterning, second-harmonic ($\lambda = 515$ nm), 230-fs FWHM laser pulses from a Yb:KGW laser system (PHAROS, Light Conversion Ltd.) are focused into a submicrometer spot using a dry objective lens with numerical aperture NA=0.5 (Mitutoyo M Plan Apo NIR HR). Each surface structure presented in Figs. 1(a)–1(e) is produced by single-pulse irradiation, keeping the constant absorbed fluence F for each single array, while increasing its value stepwise from 26 to 47.8 mJ/cm² per pulse for subsequently patterned arrays [Figs. 1(a)–1(e)].

After such laser fabrication, the sample, containing nanostructures, is overcoated with a protective titanium (Ti) film. The Ti coating provides a good contrast of FIB

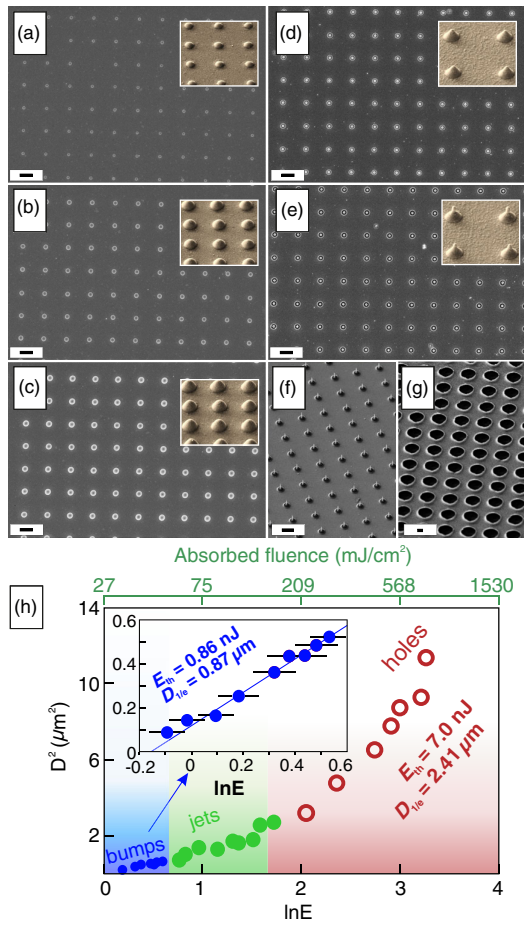


FIG. 1. (a)–(e) SEM images of the nanostructure arrays fabricated at increasing absorbed fluence in units of mJ/cm^2 : (a) 26, (b) 33.6, (c) 39.4, (d) 45.2, (e) 47.8; the insets present side-view (view angle of 45°) SEM images of the corresponding structures. (f),(g) Side-view (view angle of 45°) SEM images of nanojet and microhole arrays fabricated at absorbed fluences: (f) 92 and (g) 1130 mJ/cm^2 , respectively. The scale bars for these images correspond to 1 μm . The absorbed fluence is estimated as $F = AE(\pi R_{\text{opt}}^2)^{-1}$ considering the constant absorbance of $A = 0.35$ [39,40] and optical spot radius $R_{\text{opt}} = 0.61\lambda (\text{NA})^{-1}$. (h) Squared outer diameter D^2 of the nanobumps, nanojets, and through holes versus the natural logarithm of the applied pulse energy $\ln E$ (E in nJ, bottom axis) and absorbed fluence F (upper colored axis). The inset illustrates the magnified leftmost part of this dependence. The slope of the fitting lines for bumps and through holes indicates the characteristic energy deposition diameter, while the intersection with the x axis indicates the threshold pulse energy required to produce the bump structure.

cuts of the laser-fabricated nano- and microstructures during their SEM visualization. For small parabola-shaped microbumps [Figs. 1(a) and 1(b)], the 100-nm-thick Ti film is postdeposited, while for taller structures a twice-thicker protective layer is used to ensure their complete coverage. The succeeding FIB milling of the sample is performed at

the 30-kV acceleration voltage and the relatively small beam current of 50 pA to produce smooth walls. For each type of nano- or microstructure, at least ten similar cuts are prepared to provide statistical significance and to reveal small fluctuations due to the instability of the laser fluence, as well as stochastic inhomogeneities of the metal film-glass substrate. Finally, the fabricated FIB cuts are visualized, using a field-emission SEM module of the e -beam lithography writer Raith 150-TWO.

By measuring the dependence of squared diameters D^2 of the through holes produced in the Au film versus natural logarithm of incident pulse energy, $\ln(E)$, the corresponding threshold pulse energy of $E_{\text{th,hole}} = 7.0 \pm 0.7$ nJ [red dots in Fig. 1(h)] is estimated, with its slope indicating the characteristic energy deposition diameter $D_{1/e,\text{hole}}$ of 2.4 μm . This gives the deposited threshold fluence $F_{\text{th,hole}} = AE_{\text{th,hole}}(\pi R_{1/e,\text{hole}}^2)^{-1} = 53 \pm 7$ mJ/cm^2 for the 50-nm-thick Au film absorbance $A \approx 0.35$ [39,40] (see also Note 3 in the Appendix), which is in good agreement with previously reported values; see also Fig. 4 below. Similar dependences of basement radii measured for nanobumps and jets [blue and green dots in Fig. 1(h)], evaluated considering the bending-inflection point on the film-membrane surface, indicate practically the same deposited fluence $F_{\text{th,bump}} = AE_{\text{th,bump}}(\pi R_{1/e,\text{bump}}^2)^{-1} = 49 \pm 6$ mJ/cm^2 at the threshold pulse energy $E_{\text{th,bump}} = 0.86 \pm 0.09$ nJ and almost threefold smaller energy deposition radius $D_{1/e,\text{bump}} = 0.87 \pm 0.09$ μm . Obviously, the different energy deposition scales— $D_{1/e,\text{bump}} \approx 0.9$ μm and $D_{1/e,\text{hole}} \approx 2.4$ μm —indicate, for the same focusing conditions, the corresponding different temporal scales of their formation, enabling the laser-deposited energy in the thin film to be transported laterally from the focal spot (diameter $D_{\text{opt}} \approx 1.2$ μm) via electronic heat conduction. Specifically, in the case of microholes $t_{\text{hole}} \approx (D_{1/e,\text{hole}}^2 - D_{\text{opt}}^2)/4\chi \approx 9$ ns, respectively, for the high-temperature (1000 K) thermal diffusivity coefficient of solid gold $\chi \approx 1.2$ cm^2/s [43] being comparable to previous similar estimates [44,45].

A series of side-view SEM images [Figs. 2(a)–2(e)] demonstrate the central cross-section cuts of the different structures produced on the surface of the Au film at the increasing absorbed fluence [each presented image illustrates the cut of one of the surface structure previously shown in Figs. 1(a)–1(e)]. The detailed analysis of the cuts indicate that for parabola-shaped nanobumps produced at the pulse energies slightly above the measured threshold for the nanobump formation ($F_{\text{th}} > 49$ mJ/cm^2), the thickness of the Au film remains almost unchanged with some negligible material redistribution, occurring only near the edges of the nanobump [Figs. 2(a1) and 2(b1)]. For the increasing absorbed fluence [Figs. 2(c) and 2(d)], significant thinning of the film is observed (in some specific points near the nanobump edge the film becomes twice thinner) and is associated with the corresponding increase

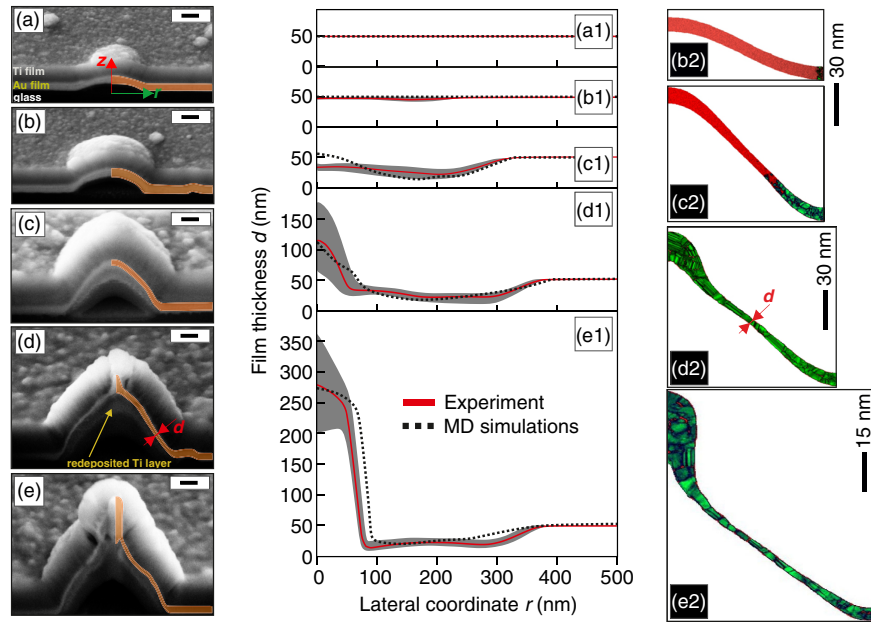


FIG. 2. (a)–(e) Side-view SEM images (view angle of 45°) of FIB cross-sectional cuts of single frozen-surface structures produced at the increasing absorbed fluence and previously shown in Figs. 1(a)–1(e), respectively. Orange areas in each image highlight the Au film and membrane. The scale bars for these images correspond to 100 nm. The darker gray layer under the Au layer, appearing in the images (c)–(e), is attributed to the redeposition of the Ti layer during the FIB milling, which is confirmed by the corresponding EDX measurements; (a1)–(e1) Film-membrane thickness d experimentally measured over 10 similar cuts of the 10 similar surface structures produced at the same irradiation conditions (red curves), and recalculated via corresponding MD simulations (black dotted curve) as a function of the lateral r -coordinate (cylindrical radius) defined in Fig. 2(a). Film-membrane thickness d is measured and recalculated in the directions normal to its local section [details are given in the inset in Fig. 3(b) below]. Gray areas indicate the error bar; (b2)–(e2) molecular-dynamics (MD) simulations showing the modification of the metal shell with absorbed energy. Red and green colors divide the molten and solid states of the film.

of the nanobump height. The subsequent evolution of the nanobump shape—from parabolic to conical—occurs at the further increase of the fluence [Figs. 2(d) and (d1)] accompanied by the accumulation of the molten material at the nanobump tip in the form of the 120-nm-high and 100-nm-wide protrusion. The lateral and vertical dimensions of this protrusion continuously increase versus the F value [Figs. 2(d), 2(e), 2(d1), and 2(e1)], forming a nanojet, while the surrounding nanobump becomes thinner through the jet-directed nanoscale hydrodynamic flow with its minimal experimentally observed thickness, reaching ≈ 13 nm near the nanojet edge and ≈ 20 nm near the nanobump edge. A further increase of the absorbed fluence stimulates the growth of the central protrusion [see Fig. 1(f) as well as Note 1 in the Appendix], while the surrounding shell continuously thins until its destruction accompanied by the formation of a micrometer-wide through hole [Fig. 1(g)].

Despite its straightforward character, such FIB cutting of surface nanotextures produced on noble-metal films, which are typically weakly resistant to electron- and ion-beam exposures, requires additional sample overcoating by some protective layer, mostly excluding its following practical nanophotonic applications. In this respect, nondestructive

and noninvasive experimental methods, enabling a quantitative characterization of the supported nanoscale structures, are required. In this study, we have performed a nanoscale cross-sectional SEM-based EDX analysis schematically illustrated in Fig. 3(a) of the typical structures shown in Fig. 2(e). In this case, the EDX signal profile in the membrane normalized to that of the unperturbed film to give the corresponding membrane thickness profile. The advantage of the EDX acquisition is its almost nonperturbative character, as compared to the above-mentioned FIB-SEM combination. Indeed, FIB-SEM requires (i) deposition of a highly cohesive material (Ti) layer with the simultaneous release of very high cohesive energy (sublimation enthalpy of a few eV/atom), which can perturb—melt or even vaporize—the initial structure, if the Ti deposition rate and conduction of the releasing heat is inappropriately adjusted and, also, (ii) FIB cutting of the layered set can perturb the initial nanofeatures, if ion currents or the thickness of the deposited Ti layer are improperly chosen. Among these EDX-characterized surface nanostructures, the microbump, containing the small nanojet atop, provides the maximal metal thickness redistribution—from the 13-nm-thick cap of the bump to a few hundred-nm high protrusion—as it was previously confirmed by SEM

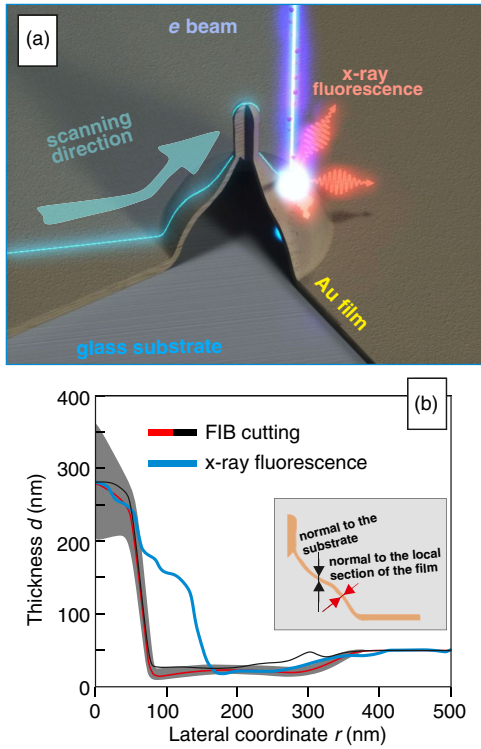


FIG. 3. (a) Sketch explaining the principle of the EDX profiling across the nanofeature by the e -beam excitation and subsequent detection of the characteristic x-ray fluorescence signal. (b) Radial profiles of film-membrane thickness measured using EDX cross-sectional analysis (blue curve) and FIB cutting–SEM visualization recalculated to present the film thickness in the direction normal to the substrate (black curve) and normal to the local section of the film-membrane (red curve). The inset shows the difference between the actual thickness along the normal to its local section and the top-view EDX-acquired thickness.

analysis of the FIB cuts. Additionally, the steep wall of the central protrusion in Fig. 2(e) represents almost a perfect object to estimate the lateral resolution of this SEM-based EDX approach.

EDX cross-sectional (radial) elemental microanalysis is carried out with a field-emission SEM microscope JEOL 7001F using an INCA Energy 350XT spectrometer (Oxford Instruments Analytical), at the electron energies of 10 and 30 keV, while the electron beam current is chosen at the level of 79 pA to avoid thermal damage of the nanostructures on the film. The acquisition of the EDX profiles for the laser-induced surface nanofeatures at the particular electron energies, which provide the penetration depths in the film and the supporting substrate much larger than the 50-nm film thickness, enables their calibration in terms of thickness, using the reference EDX-signal value for the nonirradiated gold film.

More specifically, the 30-keV electron beam provides too low and noisy EDX signals from the flattened regions of

the thin Au film due to its very deep ($2\text{--}3\ \mu\text{m}$) penetration through the film into the supporting substrate, but the 30-keV beam produces the appropriate EDX signals across the micron-tall nanofeatures, formed by the laser-driven melt accumulation (the central protrusion atop the nanobump). In contrast, the 10-keV electron beam provides reasonable EDX signals from the gold film and laser-induced features of comparable thickness, but is almost completely absorbed by the micron-tall surface features, excluding calibration of the corresponding EDX signals. As a result, the acquired cross-sectional EDX profiles are linked in the transition region from the thinned film within the bump and the tall central protrusion, representing the initial stage of the nanojet formation, with the 30-keV EDX signal in the center and 10-keV EDX signal at the periphery.

Figure 3(b) shows the EDX-profiling results for the thickness of the nanojet with the surrounding nanobump [Figs. 2(e) and 2(e1)] in comparison to the side-view SEM measurements of its thickness along the normal to the substrate, using the cross-sectional cuts. Both curves indicate a good agreement within the experimental error bars for all three topographies—the nonirradiated film, nanobump, and nanojet, supporting the relevance of both of these approaches. A minor difference in the spatial resolution of these approaches indicated by the 100-nm difference of the nanojet radius in Fig. 3, is a broadening artifact of an external electromagnetic noise in the local circuits during the prolonged EDX-profiling procedure of 3–5 min.

III. SIMULATION TECHNIQUE

In this study, a comprehensive simulation approach, including the two-temperature electron-ion hydrodynamics (2T-HD) and the classical molecular-dynamics method combined with Monte Carlo heat transfer by electrons (MD-MC) [46] is used, to represent the next step toward the accurate prediction of the translative flow-assisted redistribution of material after the ultrashort laser exposure. To achieve this goal, all relevant physical processes underlying the material response to such tightly localized ultrafast energy deposition in a skin layer should be taken into account. However, the simultaneous consideration of those multiple processes on the micrometer-sized scale during several nanoseconds with our simulation technique, including billions of interacting atoms and electrons, far exceeds the limits of available supercomputers; the largest and longest MD simulations [29,47,48] of laser ablation today operate with fewer 0.1×10^9 atoms and up to 3 ns only. To overcome this limitation, we divide all physical processes into “fast” and “slow” processes, and apply the 2T-HD or MD-MC model, respectively.

The 2T-HD model, describing the first short evolution stage with its typical duration of the order of acoustic time scale (≈ 17 ps for our 50-nm-thick Au film and longitudinal speed of sound in gold of 3 km/s), includes one-dimensional 2T hydrodynamic code having a full 2T

physics: absorption laser energy, 2T electron thermal conduction, energy exchange between electrons and atomic vibrations via their coupling, and a 2T equation of state. Thus, the model takes into account all fast processes associated with electron pressure, electron conductivity, electron-ion temperature relaxation in gold lasting 7–10 ps [49], and separation of the molten film from the substrate with separation velocity $\nu_{c.m.}(r)$ depending on the local stress $p(r)$ generated by isochoric laser heating of film up to lattice temperatures of a few thousand degrees produced by the absorbed fluence $F_{abs}(r)$. 2T-HD calculations show that in 1–2 ps the electron heat conduction approximately homogeneously redistributes electron temperature T_e along the thickness of a film. After that normal to film gradient of T_e drops down but the 2T stage continues during 7–10 ps equilibrating electron and ion temperatures along the thickness. Thus, the temperature becomes dependent only on the lateral directions after the conclusion of the 2T stage. Fast homogenization of temperature takes place because the thickness of our gold film is less than the thickness of a heat-affected zone in a bulk gold [50,51].

The stress of $p(r) \sim 10$ GPa generated within the first stage, is responsible for the separation of film from the substrate. The 2T-HD model provides the separation velocities $\nu_{c.m.} \approx (Z_s/Z_f)(p/B)c_s$ ranging from 0 to ≈ 60 m/s, where c_s is the longitudinal speed of sound in gold, B is the bulk modulus of gold, Z_s, Z_f are acoustic impedances of the substrate and the film, respectively, see details in Note 2 of the Appendix where a comparison between velocities $\nu_{c.m.}$ in simulations and experiments is discussed.

The second, slow evolution stage starts after the separation of a film from the substrate and completes after the recrystallization of the molten cupola, which requires tens of nanoseconds typically. To simulate the slow processes initiated within the fast stage, the combined MD-MC approach is utilized. We (i) use known values for surface tension, density, and the coefficient of thermal conductivity together with (ii) the experimental lateral size of the cupola, thickness of a film, and the incident fluence in the tip, convert the incident fluence into absorbed fluence using a known value for the dielectric constant at our laser wavelength. Then, (iii) we use velocities from the hydrodynamic 2T-HD code for the particular experimental absorbed fluences. With all this, we calculate experimental dimensionless capillary and thermal parameters, shown below in

this section and in the Appendix. Afterwards, we run the MD-MC code for these particular values of the two dimensionless parameters.

Then, the embedded atom method interatomic potential for gold is used [52], reproducing well the stress-strain and thermal characteristics of gold. The potential gives the density of melt about 16.9 g/cm^3 and the melting point of about 1330 K, which is close to the experimental $T_m = 1337$ K. The calculated surface tension of 0.546 J/m^2 is notably lower than the experimental $\sigma = 1.125 \text{ J/cm}^2$ at the melting temperature, see the discussion in the Appendix of Ref. [23].

The simulation parameters of two selected MD-MC calculations are presented in Table I. A thin film with a thickness d is placed in a square simulation box with dimensions $L_x = L_y = 140 \text{ nm}$ for the case “ e ” or $L_x = L_y = 270 \text{ nm}$ for the case “ d ”. The periodical boundary conditions are imposed along the x and y axes. Then, the film is thermalized with the given radial temperature profile $T(r)$ with the fixed $T(r_c) = 1500$ K. After melting and equilibration the film gains the vertical-separation velocity $\nu_{c.m.}(r) \sim \cos(\pi r/2r_c)$ with the maximum at the center, presented in Table I, and zero velocity at the r_c . Because the maximal temperature of the film is much less than the boiling temperature ($\approx 3.2 \text{ kK}$), the saturated vapor pressure is too small to cause any dynamic effect on the moving film. Indeed, evaporation is not even observed in our MD simulations in the given temperature range.

MD-MC simulations reveal the translative flow-assisted redistribution of the molten film with MC heat transfer resulting in the subsequent resolidification of liquid via heat-conduction cooling of the hot cupolalike shell. The thermal diffusivity shown in Table I is adjusted by the MC electron jumping rate between neighbor atoms as described in Ref. [46]. A heat sink is simulated by using the Langevin thermostat with the typical temperature of 500 K for all atoms with $r > r_c$, which leads to the resolidification of film from its edge with time. This thermostat maintains also the zero-mass velocity outside the circle r_c , which keeps mechanically the film outside the circle at the substrate. This condition corresponds to the fixed boundary conditions implied at the edge r_c of the cupola.

The MD-MC simulation of a realistic micrometer-sized film having a very large amount of involved atoms ($\sim 10^9$) during a long cooling time of many tens of nanoseconds is

TABLE I. Parameters of MD-MC simulations for two regimes of mass redistribution leading to the formation of either bumps or jets. This makes it possible to plot the theoretical boundary between these regimes marked as points “ d ” and “ e ” in Fig. 4. The corresponding final structures obtained in the simulation are shown in Figs. 2(d1), 2(d2), 2(e1), and 2(e2).

No.	N_{atoms}	$2r_c$ (nm)	d (nm)	χ (cm ² /s)	$\nu_{c.m.}$ (m/s)	ν_σ (m/s)	ν_χ (m/s)	V_σ	V_χ
d	44×10^6	260	10	0.18	200	106	69	0.529	0.346
e	6×10^6	130	5.1	0.18	385	148	138	0.384	0.358

not feasible on the available computers. Instead, the small-sized films with several millions of atoms are simulated (Table I). To meet the experimental conditions, the scaling approach [30] is used. Two nondimensional parameters, governing the evolution of film separating from the substrate with the velocity $\nu_{c.m.}$, are the capillary parameter

$$V_\sigma = \nu_\sigma / \nu_{c.m.} \quad (1)$$

and the thermal parameter

$$V_\kappa = \nu_\chi / \nu_{c.m.}, \quad (2)$$

where the capillary velocity ν_σ and the thermal velocity ν_χ are defined as

$$\nu_\sigma = 2\sqrt{\sigma/(\rho d)}, \quad \nu_\chi = \chi/(2r_c). \quad (3)$$

Here, χ is the thermal diffusivity, σ the surface tension, ρ the initial density, d the initial thickness of metal film, and r_c the separation radius. These governing parameters are also listed in Table I.

IV. REGIMES OF MASS REDISTRIBUTION FROM EXPERIMENTS AND SIMULATIONS

Analysis of the FIB cuts performed on surface features produced at the different incident pulse energies [Figs. 2(a)–2(e)] indicates several steps, characterizing the molten film evolution via corresponding translative hydrodynamic flows and affecting the resulting thickness distribution along the produced surface structure: (i) inflation of the metal film in the form of the parabolic-shaped cupola, having a constant thickness along its circumference; (ii) weak redistribution of the cupola thickness; (iii) transformation from parabolic to conical shape; and, finally, (iv) appearance of the central protrusion.

Despite the downscaled computation dimensions used in MD-MC simulations, all these steps are perfectly reproduced in our theoretical model by varying the thermal and capillary parameters [Figs. 2(b)–2(e2)], which both depend on the absorbed fluence F , in their turn. Here, to illustrate the film thickness distribution for parabola-shaped bumps [Figs. 2(b2) and 2(c2)] a few simulated snapshots are taken at different times, when the moving metal film is not completely frozen (red and green colors divide the molten and resolidified states of the film). By increasing the heat conductivity in the MD-MC simulations, the completely resolidified parabola-shaped bumps with the negligible redistribution of mass along the film can be obtained. In the case when redistribution of mass is weak the final thickness is approximately equal to the initial thickness. This conclusion is in agreement with our previous two-dimensional (2D) MD-MC simulations showing the weakening of the redistribution when absorbed energy is small and conduction cooling is fast [23,53]. The frozen shapes

are similar for 2D and three-dimensional (3D) geometries in case of fast cooling. Upscaling the film thickness via thin-shell recalculation [53] also gives a perfect qualitative agreement with the experimentally measured thickness distributions for all surface structures [Figs. 2(a1)–2(e1)], providing the reliable way for a theoretical simulation of the fabricated surface 3D features.

Other common surface structures, such as high-aspect-ratio nanojets and through holes [Figs. 1(f)–1(h)], can be also reproduced by varying the capillary and thermal parameters in the MD-MC simulation. Carrying out such simulations as well as using our recently published results [30], we have built the map of the corresponding non-dimensional governing parameters required to reproduce the certain type of the structure, where the transitions (or boundaries) between “bump-jet” and “jet-hole” regimes are marked with the transition blue-green and green-red strips, respectively (see Fig. 4). Specifically, two important dots marked as “d” and “e” letters, reflecting the parameter set for MD-MC simulations from Figs. 2(d2) and 2(e2) as well as establishing the theoretical bump-jet regime boundary, are indicated in this map. These two important regimes can be formally divided according to relative translative-flow assisted mass redistribution of the molten film near the bump tip. This separation follows from the analysis of the simulated structures with moderate and significant material redistribution near the structure central axis [Figs. 2(d2) and 2(e2), respectively]. A similar formal separation can also be applied for our experimental results [see Figs. 1(d), 1(e), and 1(h), and discussions below]. The corresponding parameter set for *d* and *e* dots are summarized in the Table I.

We estimate the thermal and capillary parameters, which correspond to our five main experimental points [see Figs. 2(a1)–2(e1)] on the (V_σ, V_κ) parameter plane (hollow circles in Fig. 4) using the typical diameter of the bump $2r_c \approx 900$ nm from Fig. 1(h) and corresponding Eqs. (1)–(3). Taking into account the temperature-dependent surface tension of molten gold ≈ 0.9 J/m² [23] and the thermal diffusivity $\chi \approx 0.5$ cm²/s, for our 50-nm-thick Au film the thermal and capillary velocities are equal to $\nu_\chi \approx 56$ m/s and $\nu_\sigma \approx 61$ m/s, respectively. Although the experimental values of σ , κ , r_c , and the corresponding velocities ν_σ and ν_κ are well defined, the experimental separation velocity $\nu_{c.m.}$, required to estimate the V_σ and V_κ , is an unknown parameter.

For the fixed diameter of the optical spot and the absorption coefficient A weakly dependent on the incident fluence F_{inc} , which holds true in our energy range, the absorbed fluence F_{abs} will be proportional to the pulse energy E . On the other hand, according to our 2T-HD simulations of the separation stage and considering negligibly weak adhesion between the Au film and the silica substrate, the velocity $\nu_{c.m.}$ is proportional to the applied pulse energy E [53]. Using this proportion and assuming that

$$\nu_{c.m.}(E) = (\nu_{c.m.}|_{E=1.7})(E/1.7), \quad (4)$$

where E is given in nJ and $\nu_{c.m.}|_{E=1.7}$ is an adjustable separation velocity at $E = 1.7$ nJ (the corresponding absorbed fluence is 47.8 mJ/cm^2), one can obtain the set of the governing parameters on the capillary-thermal plane (V_σ, V_κ) (1), (2) related to our particular experimental cases for the fixed $\nu_{c.m.}|_{E=1.7}$ value.

To obtain the separation velocity $\nu_{c.m.}$ as a function of the absorbed fluence F_{abs} and assess its reliable value, the one-dimensional 2T-HD modeling of film on the glass substrate is performed (see Note 2 in the Appendix for details). Assuming the $\nu_{c.m.}|_{E=1.7} = 110 \text{ m/s}$ and using Eq. (4), we obtain the set of governing parameters on the (V_σ, V_κ) plane (hollow markers in Fig. 4), which corresponds to our experimental results [Figs. 2(a1)–2(e1)]. An analysis of the parameter plane indicates that the experimental bump-jet transition boundary (dashed curve in Fig. 4) defined by the surface structures obtained at absorbed fluences 45.2 and 47.8 mJ/cm^2 (blue and green hollow circles, respectively) is located $\sim 30\%$ – 40% higher than the corresponding boundary estimated from the analysis of the simulation results. This deviation can be explained by the difference in

conditions. The boundary condition established in our MD-MC simulations poorly reproduces a real experimental situation since the heat sink and the area defining the mechanical attachment of a bump to the substrate are much closer to the edge of the simulated bump (see Appendix). Under such circumstances, the simulated shell is stronger, thus shifting the theoretical transition boundary closer to the point of origin in Fig. 4.

Finally, it is plausible that the relative ratio between the bump-jet and jet-hole threshold boundaries is weakly sensitive to the difference in the mentioned boundary conditions. The experimentally measured ratio of the characteristic threshold energies required for the formation of the through hole and the jet [corresponding energy logarithms $\ln(E)$ are equal to 1.9 and 0.65 in Fig. 1(h)] is about 3.5 . Analysis of the calculated capillary-thermal parameter map (position of the gradient-color stripes in Fig. 4) gives the ratio equal to 3.6 . This ratio is calculated measuring the distances from the origin of the two characteristic dots on the intersection of the diagonal line in Fig. 4 and the theoretical bump-jet and jet-hole threshold boundaries. Thus, the theoretical and experimental results are in satisfactorily good agreement with each other.

V. CONCLUSIONS AND OUTLOOK

Experimental procedures based on the SEM inspection of nanoscale focused ion beam cross sections and energy-dispersive x-ray fluorescence nanoscale profiling, demonstrate a consistent nanoscale invasive and noninvasive characterization of mass-density distributions within individual radially symmetric topological surface structures—separate nanobumps and jets on nanobumps, produced by a single-shot ablation of 50-nm -thick glass-supported gold films by tightly focused fs-laser pulses at variable pulse energies. More specifically, radial mass distribution (thickness) across the individual features is quantitatively acquired either by their nanoscale focused-ion beam cutting and following side-view electron microscopy analysis, or by direct top-view radial nanoprofilng of their relative thickness using energy-dispersive x-ray fluorescence spectroscopy at different electron-beam energies, calibrated by the signal from the unperturbed film. These demonstrated advanced characterization approaches pave the way to detailed modeling of a near-field electromagnetic response of fabricated metasurfaces and can be adopted for fully automated noninvasive in-line control during high-throughput large-scale laser fabrication.

Comparative molecular-dynamics simulations are undertaken to envision spatiotemporal dynamics of the underlying nanoscale hydrodynamic melt flows and are shown to provide quantitative predictions of the evolution of the metal film thickness, enabling in the future realistic predictions of more-complex 3D nanostructures and 3D-structured nanomaterials [54] produced by focused ultrashort laser pulses, carrying, for example, angular

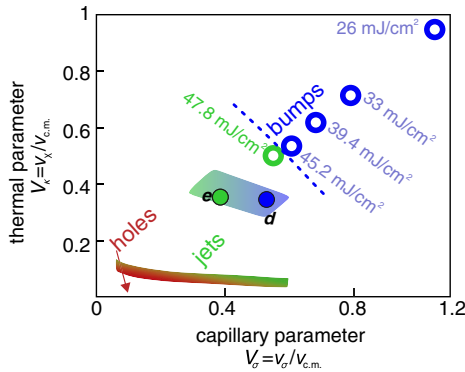


FIG. 4. The map of the thermal V_κ and capillary V_σ parameters. The filled markers “d” and “e” indicate the simulated parameters used to obtain the resolidified geometries presented in Figs. 2(d2) and 2(e2), respectively. Other simulated markers used to accumulate statistics on the corresponding regimes are not shown to avoid overburdening of the figure. Instead, two gradient-color stripes are used to show the characteristic “hole-jet” (red-green) and “jet-bump” (green-blue) transition boundaries provided by the MD-MC simulations. The experimental capillary and thermal parameters marked as hollow markers are estimated considering the separation velocity of $\nu_{c.m.} = 110 \text{ m/s}$ at absorbed fluence of 47.8 mJ/cm^2 (see text for details). The corresponding absorbed fluence (in mJ/cm^2) is indicated near each hollow marker. The dashed line shows the experimental jet-bump regime boundary. The colors of the markers (both filled and hollow) indicate the transition between different fluence-dependent regimes providing formation of the bumps (blue) and the jets (green), while the similar color scheme is used to divide the corresponding pulse energy–fluence ranges in Fig. 1(h).

momentum [55–59] (vortex laser pulses), and accurate simulations of more-complicated systems, such as materials with new metastable amorphous and crystalline phases [60,61], phase-change materials [62,63], or metallic glasses [64]. In this line, the quantitative characterization of the mass distribution profiles for the laser-fabricated 3D nano-scale structures lays down a solid basis for solution of the reverse problem, related to evolution dynamics on nano-structures to benchmark theoretical models.

ACKNOWLEDGMENTS

The main experimental part of this research is supported by the Russian Science Foundation (Grant No. 17-19-01325). S. J. acknowledges the Workshop of Photonics R&D. Ltd. for the laser fabrication setup acquired via a collaborative grant and the Australian Research Council DP170100131 Discovery project. In the part of EDX characterization, S. I. K. is grateful for the financial support by the Government of the Russian Federation (Grant No. 074-U01) through the ITMO Visiting Professorship Program. V. V. Z. and N. A. I. are responsible for the theoretical part of the paper, simulations, and comparison with experimental data; they acknowledge the grant of the Russian Science Foundation (Project No. 14-19-01599).

APPENDIX: ADDITIONAL INFORMATION

Note 1. Pronounced jet atop the nanobump.—Figure 5 shows the tilted SEM image of a high-aspect-ratio nanojet produced at absorbed fluence of 56.8 mJ/cm². This snapshot illustrates the formation of the 900-nm-high jet above the cupola as well as the starting point of the formation process of the spherical-shape droplet, which will be ejected at increased absorbed fluence. The modulation of the thickness along the nanojet height manifests development of the Rayleigh-Plateau hydrodynamic instability acting on the molten metal moving upward along the jet.

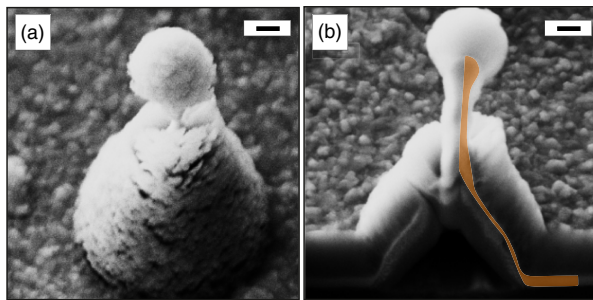


FIG. 5. Side-view SEM images (view angle of 45°) of the nanojet produced at absorbed fluence of 57 mJ/cm² (a) and its FIB cross-sectional central cut (b). The nanojet is overcoated with a 200-nm-thick protective Ti layer. The first SEM image (a) illustrates the nonuniform coverage with the Ti overlayer. Orange areas in the second image (b) highlight the Au film-membrane. The scale bars for both images correspond to 100 nm.

Note 2. Internal rupture.—Because the experimental separation velocity is adjusted to provide the agreement between experimental and simulation results, additional discussion is given here to substantiate the chosen separation velocity

$$\nu_{c.m.}|_{E=1.7} = 110 \text{ m/s.}$$

To estimate the dependence of the $\nu_{c.m.}$ on the absorbed fluence F_{abs} , we have carried out the one-dimensional 2T-HD simulations neglecting the adhesion of gold to the silica substrate thanks to the hydrophobic property of silica against molten gold. The 2T-HD simulations show that the film is homogeneously heated across its thickness d during ≈ 1 ps after the ultrashort pulse irradiation [53]. Fast spreading of absorbed energy from a skin layer proceeds due to an electron thermal conductivity strongly enhanced at the 2T stage. According to our simulations [see Fig. 6(a)], below the threshold F_{rup} of the internal rupture of a film, a film separates as a whole from substrate at the velocity $\nu_{c.m.}(F_{abs})$. This accumulation continues during the temporal interval when a film remains in mechanical contact with the substrate. Velocity $\nu_{c.m.}(F_{abs})$ is obtained after the instant of separation by averaging local velocities over the film thickness. Thus, velocity $\nu_{c.m.}$ represent a velocity of a center of mass (c.m.) of a film.

Two rarefaction waves V and C running towards each other from the “vacuum-film” (V , vacuum) and “substrate-film” (C , contact) boundaries create a layer with a negative pressure p_{tensl} near the middle plane of a film; see details in Refs. [23,53]. These two waves begin to interact at an acoustic time scale $t \approx t_s/2$; $t_s = d/c_s$, d is the thickness of a film, c_s is a sound speed. For fluences $F < F_{rup}$ the tensile stress $|p_{tensl}|$ created by V - C interaction is below the material strength $p_{strength}$ of gold. Thus, at such conditions the film survives under stretching (no internal rupture).

If the film survives, then the wave V running from the vacuum side continues its run in the direction to the contact (the boundary between a film and substrate). The wave V arrives at the contact at the instant $t \approx t_s$. Pressure $p_c(t)$ at the contact evolves over time. The acoustic impedance of gold Z_g is approximately 7 times larger than the impedance of silica Z_s . Pressure p_c is significantly less than the pressures p in the bulk of a film: $p_c \approx (Z_s/Z_g)p$. When the wave V achieves the contact then the function $p_c(t)$ changes its sign from positive to negative [23,53]. Adhesion is small, therefore, the separation of a film as a whole from substrate [shown in the upper picture in the left column in Fig. 6(b)] begins around the time $t \approx t_s$. The separation is caused by the tensile action of the wave V onto the contact.

The situation changes dramatically if $F > F_{rup}$, the tensile stress $|p_{tensl}|$ overcomes the strength $p_{strength}$, and the film begins to split into the vacuum and the contact parts before the rupture of the contact. This is shown in the

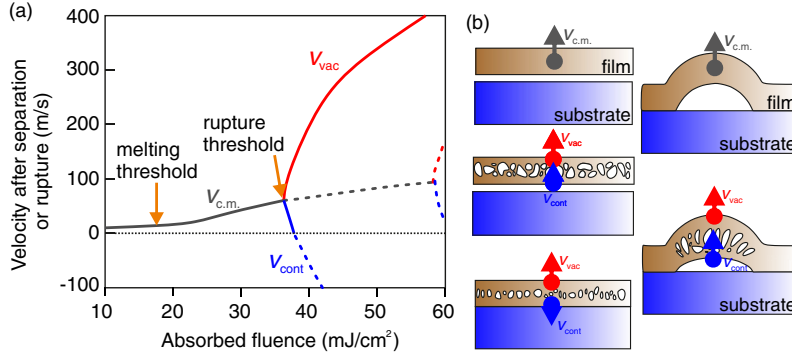


FIG. 6. (a) Velocity $\nu_{c.m.}$ of the separated metal film as a function of the absorbed fluence F_{abs} . There are two different fluence-dependent separation regimes schematically shown in the left column of (b). At the fluences F_{abs} lower than the rupture threshold F_{rup} the film separates as a whole having the local center-of-mass velocity $\nu_{c.m.}(F_{abs})$ [see the upper picture in the left column in (b)], while at higher fluences the film splits into “vacuum” and “contact” parts having averaged velocities $\nu_{vac}(F_{abs})$ and $\nu_{cont}(F_{abs})$, respectively; see the middle and bottom diagrams in the left column in (b).

middle and bottom diagrams in the left column in Fig. 6(b). Velocities ν_{vac} and ν_{cont} in these two diagrams refer to the vacuum and the contact parts of a film at the stage when the parts lose their mechanical connections. Values ν_{vac} and ν_{cont} are obtained by averaging along thicknesses of the vacuum and the contact parts.

As is said, the ratio of impedances of gold Z_g to silica Z_s is large. Therefore, the expansion of a film after the action of an ultrashort laser pulse is approximately symmetric relative to the middle plane of a film. A small deviation from symmetry is caused by a small but finite ratio of impedances Z_s/Z_g (and also because $d < d_T$, but not $d \ll d_T$, where d_T is the thickness of a heat-affected zone). In the case when $Z_s/Z_g = 0$ and the film is thin (thus, it is almost homogeneously heated across its thickness), the velocity $\nu_{c.m.}$ is ≈ 0 in spite of significant expansion velocities. The expansion velocities connected with the rarefaction waves V and C are opposite in their directions and compensate each other giving a resulting small velocity of the center of mass $\nu_{c.m.}(F_{abs})$ if $F < F_{rup}$; see Fig. 6(a).

Above the rupture threshold F_{rup} the center-of-mass velocities ν_{vac} and ν_{cont} of the vacuum and the contact parts are split; for $F < F_{rup}$ we can formally write $\nu_{c.m.} = \nu_{vac} + \nu_{cont}$. There is a short interval near the F_{rup} in Fig. 6(a) where velocities ν_{vac} and ν_{cont} have the same sign directed into the vacuum side. The situation corresponding to this interval is illustrated by the middle scheme in the left column of Fig. 6(b).

Above this interval the contact part moves in the direction of the substrate. The continuation of the $\nu_{cont}(F_{abs})$ into the range of negative velocities $\nu_{cont} < 0$ is shown by the bottom dashed curve in Fig. 6(a). Of course, this is the conventional curve because the magnitudes $\nu_{cont}(F_{abs}) < 0$ are not asymptotic magnitudes $t \rightarrow \infty$ conserved in time. (Here, we consider the 1D case when deceleration action of the surface tension is absent. This action becomes significant in the case of a finite-size irradiation spot). 2T-HD simulations and analytic analysis show that dense gold (with high Z_g) from the contact part presses the less dense silica (with low Z_s) supporting positive contact pressure $p_c(t)$ exponentially decaying in

time $p_c(t) \propto \exp(-t/t_{decay})$ with e -folding time t_{decay} of the order of t_s . This pressure decelerates the motion of the contact part and thus decreases velocity $\nu_{cont}(t)$.

We are sure that at the acoustic time scale $\sim t_s$ the velocity of the contact part remains directed to the substrate side (no separation from substrate). The fate of the contact part of the gold film at the late stage $t \gg t_s$ is unclear. At least in our experiments with an extremely small irradiation spot $r_c = 300\text{--}400$ nm described in this paper [see Figs. 2(a1)–2(e1)] we don’t see remnants of gold on the surface of silica inside the cavity under the shell of the bump. Maybe the liquid gold film fragments into a set of droplets on a surface of hydrophobic silica, and the droplets move to the periphery of the circle under the shell under the action of 3D effects and velocities directed along the surface; also partial evaporation and redeposition onto the rear side of the shell takes place.

Near the threshold $F > F_{rup}$ the velocity ν_{vac} quickly increases with the difference $F - F_{rup} > 0$, see Fig. 6(a). Below the threshold $F < F_{rup}$ the momentum

$$I = \int_{-\infty}^{ts/2} p(x = d/2, t) dt \quad (A1)$$

moving the vacuum part of a film is compensated by the resistance of condensed gold to stretching, here $p(x = d/2, t)$ is pressure in the middle of the film. If we overcome the threshold F_{rup} to a few tens of percents, then the countermomentum produced by the resistance force of condensed matter becomes small relative to the momentum (A1). Then the center-of-mass velocity of the vacuum part is $\nu_{vac} \approx I/(pd/2)$. This velocity roughly is $Z_g/Z_s \approx 7$ times larger than velocity $\nu_{c.m.}$ near threshold. This explains the growth of $\nu_{vac}(F_{abs})$ above threshold F_{rup} in Fig. 6(a).

According to the particular series of the 1D 2T-HD simulations summarized in Fig. 6(a), the values $F_{abs}|_{rup}$, $\nu_{c.m.}|_{rup}$ describing the threshold of rupture are rather small: $F_{abs}|_{rup} \approx 40$ mJ/cm², $\nu_{c.m.}|_{rup} \approx 60$ m/s. The large ratio Z_g/Z_s results in a decreasing velocity $\nu_{c.m.}$ and an increasing susceptibility of velocity $\nu_{vac}(F_{abs})$ to the raising of

energy F_{abs} above the threshold F_{rup} , see Fig. 6(a). Why do we say that the values $F_{\text{abs}}|_{\text{rup}}$ and $\nu_{\text{c.m.}}|_{\text{rup}}$ are small? Explanations are given below. The main problem is connected with the comparison of relative positions of the rupture threshold F_{rup} from Fig. 6 and the threshold F_{hole} from Fig. 4 for the appearance of a through hole; we compare their positions on the energy axis in Fig. 6. Figure 6 presents the fast stage, it doesn't know about capillary forces r_c , and the rate of slow cooling at the one-temperature stage. Definitely, $F_{\text{hole}} < F_{\text{rup}}$ for large spots r_c ; indeed, for r_c equal to many tens of microns, the capillarity can stop the separated shell only very far away, at distances $\sim r_c$; but it seems that the shell will break off before the stopping; cooling is too slow for large r_c to freeze the shell; only edges are frozen. But for small spots the situation is different, as we will see below.

Let $\nu_\sigma \approx \nu_\chi$ (3), then we are near the bisectrix of the angle between the horizontal and vertical axes in Fig. 4. The bisectrix cuts the bumps-jets and jets-holes boundaries taken from simulations at the points $V_\sigma = V_\kappa \approx 0.38$ and ≈ 0.1 , respectively.

In our experiments, the boundary conditions are softer than in MD-MC simulation: only at the infinity a film is held on the substrate (adhesion is weak) and only at the infinity the temperature returns to the initial temperature of a film equal to 300 K. While in MD-MC simulation a film is held on the substrate in the narrow rim around the radius r_c ; and cooling of the inflated shell is carried on by supporting the fixed temperature below the melting temperature in this rim, see Sec. III.

If we use the softer conditions in simulations, then the threshold velocity $\nu_{\text{c.m.}}$ necessary to shift from the regime with bumps to the regime with jets will be smaller, because the cupola is weaker mechanically connected to the film and the cooling rate is lower since the cold bath-sink is more distant. The estimates give a 30%–40% decrease of the threshold velocity $\nu_{\text{c.m.}}$. Thus, the intersections of the bisectrix with the bump-jet and jet-hole boundaries in conditions closer to the experiment will be in the points $V_\sigma = V_\kappa \sim 0.54$ and ~ 0.14 , respectively.

In our experiments, $v_\sigma \approx 60$ m/s, $v_\chi \approx 60$ m/s (3), see Sec. IV. If we take the threshold values $V_\sigma = V_\kappa \sim 0.54$ and ~ 0.14 corrected above, then the bumps exist in the range of velocities $0 < \nu_{\text{c.m.}} < 110$ m/s, while the jets and holes appear when $110 < \nu_{\text{c.m.}} < 400$ m/s and $\nu_{\text{c.m.}} > 400$ m/s, respectively. Comparing these high velocities with those in Fig. 6(a), we see that the bumps, jets, and through holes fall into the set of cases above the rupture threshold.

The rupture threshold F_{rup} in Fig. 6(a) has been found from the 1D 2T-HD runs. The value F_{rup} depends on the model of nucleation used in the code. The model has been presented in Ref. [65]. The model is adjusted to the spallation results of MD-MC simulations [66] and may somewhat underestimate the material strength of gold. If we calculate energy density $\epsilon_{\text{rup}} = F_{\text{rup}}/d$ before the bulk

expansion stage at the threshold $F_{\text{rup}} = 36$ mJ/cm² for $d=60$ nm as in Fig. 6(a), then we will obtain $\epsilon_{\text{rup}} \approx 0.64$ eV/atom. The heat of vaporization (cohesive energy E_{coh}) of gold is 342 kJ/mol = 3.4 eV/atom. According to Ref. [67], the ablation threshold F_{abl} for a freestanding Al or Cu film is 28%–30% of E_{coh} ; above the threshold F_{abl} the freestanding film separates into two halves; thus, the ablation threshold is equivalent to the rupture threshold above which a film also separates into two parts. Cu is similar to gold, therefore $\epsilon_{\text{rup}} = 0.95$ –1 eV/atom according to Ref. [67].

The shift from $\epsilon_{\text{rup}} \approx 0.64$ to 0.95–1 eV/atom increases F_{rup} and $\nu_{\text{c.m.}}|_{\text{rup}}$ to 60 mJ/cm² and 90 m/s. A corresponding continuation of the regime of separation as a whole with dependence $\nu_{\text{c.m.}}(F_{\text{abs}})$ and the shift of the threshold F_{rup} are shown in Fig. 6(a) by the dashed-line curve split at the end point to two branches. Additional corrections are related (i) to the small decrease of the threshold ϵ_{rup} from the value 0.95–1 eV/atom because film in our 1D 2T-HD simulations is 2–3 times thicker than the films studied in Ref. [67]; (ii) and with the small increase (from the value 0.95–1 eV/atom) proportional to Z_s/Z_g since due to the presence of a substrate the rarefaction wave C coming to the middle of the film from the substrate side is weaker than the rarefaction produced by the expansion into vacuum (the substrate becomes mechanically equivalent to vacuum in the limit $Z_s/Z_g \rightarrow 0$).

Additional factors increasing the threshold F_{rup} in Fig. 6(a) are linked to (i) an increase of resistance to stretching thanks to the existence of foam and to (ii) the 3D character of blistering [see the diagrams on the right-hand side of Fig. 6(b)]. These factors are illustrated in Fig. 6(b). The middle and bottom diagrams in the left column in Fig. 6(b) schematically present membranes in the foam in the plane case: $r_c = \infty$. The membranes mechanically link the vacuum and contact parts of the film after nucleation. These links reinforce a film against rupture. For the same reasons, the nucleation threshold is lower than the ablation threshold [20,26]. This is why the frozen cavities remain. But comparisons made in Note 4 below don't give significant changes in the thresholds.

In the model of rupture, used in the 1D 2T-HD code, the condensed matter is ruptured (pressure drops to zero) as the criterium of nucleation is fulfilled. Of course, this is an approximation. The real situation is shown in Fig. 6(b). The foam and the curvature of the bump may hamper the total rupture, thus increasing the values F_{rup} and $\nu_{\text{c.m.}}|_{\text{rup}}$ against the values given by the 1D 2T-HD code. But the discussion in Note 4 does not support this suggestion.

The analysis presented above shows that even in the range of high fluences $F_{\text{abs}} = 40$ –80 mJ/cm² it is still possible to keep the bump with the jet structures at the surface of the substrate (avoiding its total rupture and formation of a through hole) in spite of high values of

velocity v_{vac} . This is possible due to the high NA of the lens yielding in the relatively small (relative to previous experiments) size of an irradiated spot $R_{\text{opt}} = 600$ nm, see Fig. 2.

Velocity v_{vac} is established after the breaking of the mechanical connection through the foam between the vacuum and contact parts of the film. The only slow mechanical deceleration by surface tension directed tangentially along the surface of the vacuum part remains after the rupture of the foam. This kind of deceleration appears due to ties of the flying vacuum part with the solid film outside the separation radius. This deceleration becomes more significant with an increase of curvature of the flying film. Until the foam survives, the curvature is small and the deceleration of the vacuum part is accomplished by the liquid membranes forming the foam; this is illustrated in the left column in Fig. 6(b). At this stage the forces are directed normally to the surface of the vacuum part.

It should be mentioned again that below the rupture threshold F_{rup} the film separates as a whole. Thus, the rear side (opposite to the vacuum side) of the shell of the bump is smooth [see the upper diagrams in the left and right columns in Fig. 6(b)] because the contact between a film and substrate is smooth and the separation (the rupture of a contact) of a film from the substrate is continuous (no random nucleations). Above threshold F_{rup} the internal rupture of a film takes place. This process begins with random nucleations in the middle of the film [see the bottom diagrams in Fig. 6(b)]. The process continues with the formation of a two-phase liquid-vapor mixture transforming gradually into foam between the vacuum and contact parts of the film separated later from each other. This stage is shown in the bottom diagrams in Fig. 6(b), see also Note 4.

As it was mentioned above, the liquid membranes inside the foam connect mechanically and thermally the vacuum and contact parts during some time period. Because of mechanical connections, the vacuum part is slightly decelerated during this transition stage (transition from the connected stage to the separated stage). The thermal connections cool the vacuum part through foam. The remnants of the foam exist for some time at the rear side of the vacuum part. Thus, above the threshold F_{rup} for some time the rear side cannot be regarded as a smooth surface opposite to the cases below threshold F_{rup} ; compare the top and bottom diagrams in the right column in Fig. 6(b); see also Fig. 7.

High values of velocity v_{vac} mean that the first droplet will also have a high velocity. This droplet appears above the threshold for the separation of the first droplet from the jet. The first droplets fly perpendicularly to the surface of the substrate with a very narrow angular distribution. Thus, using a high-NA lens producing an extremely small optical spot provides the way to produce such fast, exactly directed droplets, a feature crucial for LIFT laser printing technology.

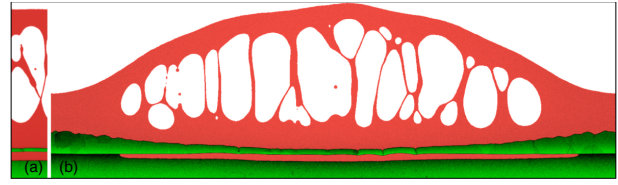


FIG. 7. Influence of curvature and nonlocal lateral interactions on dynamics. $t = 665$ ps. (a) 1D MD run (No. 353). 1D means that $r_c = \infty$ and average lateral gradients are equal to zero. Periodic boundary conditions are imposed on the lateral sides of the computational rectangle. (b) 3D MD run (No. 355), 192×10^6 atoms. Periodic boundary conditions are used on the lateral sides. The spatial period between the sides is 1000 nm. Both runs correspond to $F/F_{\text{rup}} = 1.4$, where F_{rup} is the rupture threshold; in 3D the value F is fluence in the tip. Initial structures of both runs along the normal direction are similar: there are the gold film 100-nm thick and underlying glass layer (substrate) 250–500-nm thick. Simulations show that lateral gradients defined by the aspect ratio 100:1000 of thickness to lateral period weakly influence the expansion; see also Fig. 8 and text. This conclusion follows from the comparison of heights of the vacuum boundaries. Colors present values of the symmetry parameter: red refers to liquid Au and glass, while green refers to solid Au and glass.

Note 3. Nonlinear absorption.—Absorption coefficient A depends on a state (electron and ion temperatures, density, transition layer) of reflecting matter and surface of a target. In reference books, e.g., Refs. [39,40], values A are measured under normal conditions and for clean surfaces. Coefficient A may strongly change even during an ultrashort (tens or hundreds of femtosecond) pulse, see, e.g., Ref. [68] where pump-probe measurements are employed and a strong enhancement of the absorption due to the thermal excitation of d -band electrons of gold is observed. This change influences the absorption of a pump pulse. The effect is very important in the case when prior to a pulse an absorption is weak $A \sim 1\%$. Changing reflection R from 99% to 70% will increase the absorption $\times 30$.

Coefficient $A \sim 1\%–10\%$ relates to well-reflecting metals and photon energies ϵ outside their d bands; for gold $\epsilon < 2$ eV. Namely, in this case the nonlinear enhancement of absorption is important. For metals with a d band around the Fermi level (like Pt, Ta) or metals like gold illuminated by harder photons ($\epsilon > 2.2$ eV for Au) the effect of changing of absorption A is much less significant; see the comparison between Ag and Pt dependencies A ($\lambda = \text{fixed}, F_{\text{inc}}$) in Ref. [69], $\lambda = 800$ nm = fixed in Ref. [69] is below the d -band edge for Ag. In all of these cases the absorption A is high (tens of percent) in the linear conditions (when the intensity of illumination is infinitesimally low). According to Ref. [69], in cases with highly reflecting metals, appreciable changes in the absorption of a pump pulse begin when the absorbed fluence is higher than ~ 20 mJ/cm². Value $A \approx 0.35$ for our $\epsilon = 2.41$ eV on gold does not change during pulse in our range of fluences.

Note 4. Discussion.—Note 2 above is devoted to physical reasons why the rupture threshold appears. The reasons are the same as in the case of free-standing film previously considered [66,67]. 2T-HD gives the threshold value $F_{\text{rup}} = 36 \text{ mJ/cm}^2$ for 60-nm film, see Fig. 4. The situation with film and substrate has been considered in Ref. [70] by MD methods. There is a 100-nm Au film strongly attached to the glass substrate (large cohesion). Thus, as the absorbed fluence increases, only internal rupture is possible. Value $F_{\text{rup}} = 46.5 \text{ mJ/cm}^2$ in Ref. [70]. This value is rather close to $F_{\text{rup}} = 36 \text{ mJ/cm}^2$ if we use proportion to mass $46.5 \times 60/100 = 28 \text{ mJ/cm}^2$; mass is proportional to thickness. The increase of contact cohesion shifts the separation threshold to the upper values. Separation disappears when the separation threshold overcomes the threshold F_{rup} . The value F_{rup} doesn't depend on cohesion, because rupture takes place before the stretching of contact begins (see Note 2).

Comparisons between 1D 2T-HD, 1D MD, and 3D MD are shown in Figs. 7–9. Figures 7 and 8 present 1D and 3D-2D MD runs (brief information about these simulations is given in Ref. [70]). They are compared in order to understand the importance of lateral gradients. In 1D MD an irradiated spot is infinitely large $r_c = \infty$ and the average lateral gradients are equal to zero. The 3D-2D MD run

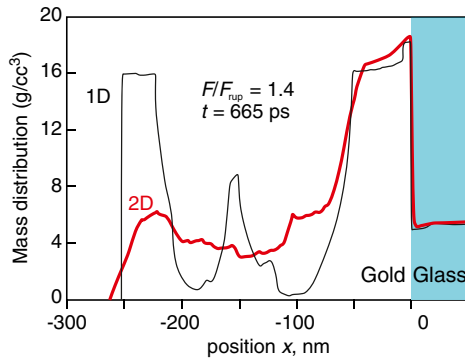


FIG. 8. Comparison of 1D No. 353 (see Table II) and 3D-2D No. 355 expansions in places with equal local values of $F = 1.4F_{\text{rup}}$. For the 3D-2D case this is the central zone around the plane $y = y_c$, where y_c is the y coordinate of the tip point. The 3D MD run shown in Fig. 7(b) has a depth in the z direction equal to 8.2 nm. Directions x , y , and z relate to the expansion direction (vertical direction in Fig. 7), horizontal direction in Fig. 7, and to the normal to the plane of picture, respectively. The z depth is small relative to the x , y sizes. Thus, the nucleation and initial expansion of voids start in the 3D environment. But later the foam transits to 2D expansion. Therefore, we call this case the 3D-2D case and write “2D” for the corresponding mass distribution $\langle \rho(x) \rangle$ obtained by averaging along the planes $x = \text{const}$. The edge points x_{left} where $\langle \rho(x_{\text{left}}) \rangle = 0$ for 1D and 2D distributions are approximately the same. This means that the 3D-2D effects (finite size of r_c) weakly influence the dynamics of expansion for $r_c \approx 1000/2 = 500 \text{ nm}$.

corresponds to the spot with finite lateral size $r_c \approx 1000/2 = 500 \text{ nm}$. Mass distributions $\langle \rho(x) \rangle$ in Fig. 8 are obtained by averaging

$$\langle \rho(x, t) \rangle = (L_y L_z)^{-1} \int_y \int_z \rho(x, y, z, t) dy dz, \quad (\text{A2})$$

where L_y , L_z are dimensions of the rectangular cross section $x = \text{const}$ of the simulation box, $\int_y \int_z$ means the integration over this cross section. In 3D-2D geometry the plane $x = \text{const}$ crosses mass curved due to finite size r_c of the illumination spot. Therefore, 3D-2D distribution $\langle \rho \rangle$ in Fig. 8 is more smeared along the x axis relative to the 1D distribution. Comparing 1D and 3D-2D we conclude that the influence of finite size $r_c \approx 500 \text{ nm}$ is weak and even has an opposite sign: x_{left} for 3D-2D in Fig. 8 is more to the left relative to the 1D one; this is caused by thermal fluctuations creating nuclei of voids and their stochastic interactions and coalescence randomly curving the vacuum boundary, see Fig. 7(b). For small r_c of the order of thickness of a film, the 3D effects should decelerate expansion relative to the 1D case (when $r_c = \infty$).

Nevertheless, comparing the 1D 2T-HD and 1D MD velocities V_{vac} in Fig. 9, we see that a spallation plate flies

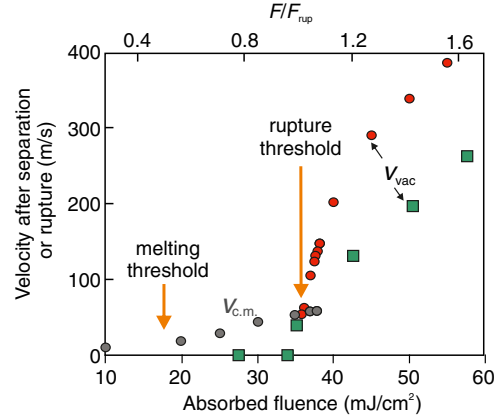


FIG. 9. This is the 1D 2T-HD dependencies taken from Fig. 4 (gray and red filled circles) compared with the six 1D MD runs Nos. 350, 351a, 351, 352, 353, 354 (from Table II) shown by the green filled squares. The snapshot $t = 0.665 \text{ ns}$ of the case No. 353 is presented in Fig. 7(A). These runs are followed up to the stage of rupture of all membranes connecting the contact part of a film and the vacuum part (spallation plate) of a film; see Fig. 4(b). This refers to the last four runs which are above the rupture threshold F_{rup} . Their green squares give asymptotic velocities $V_{\text{c.m.SP}}$ of the center of mass of the spallation plates (SP). Values of F_{rup} for 1D 2T-HD and 1D MD simulations moderately differ, see beginning of Note 4. Therefore, 1D MD velocities $V_{\text{c.m.SP}}$ (or V_{vac}) are shown as the function of normalized fluence F/F_{rup} given at the upper horizontal axis. While the 1D 2T-HD velocities $V_{\text{c.m.}}$ and $V_{\text{c.m.SP}}$ (or V_{vac}) depend on absorbed fluence given at the bottom horizontal axis.

TABLE II. Increase of temperature T_{sp} and decrease of thickness of a spallation plate d_{sp} with an increase of absorbed fluence in the six 1D MD runs.

F/F_{rup}	T_{sp} (K)	d_{sp} (nm)	No.
0.783			350
0.957			351a
1	1560	39	351
1.21	1790	40.5	352
1.43	2020	37	353
1.63	2260	34.9	354

faster in hydrodynamics, probably because the deceleration by membranes in foam is absent. Let us mention that the amount of velocity ~ 60 m/s should be extracted from the 1D 2T-HD spallation velocity $V_{vac}(F_{abs})$ in Fig. 9 because the temporal interval of positive contact pressure doesn't add momentum to the film in the case of large adhesion.

A decreased value of the electron heat conduction coefficient κ is used in 1D and 3D-2D MD simulations shown in Figs. 7–9. Therefore, there is a solid layer of gold near the contact with glass in Fig. 7; solid is green, liquid is red. The narrow layer of glass near the contact is molten thanks to its ion thermal conductivity; we neglect electron conduction in glass. Temperatures T_{sp} and thicknesses of the spallation plates d_{sp} as functions of absorbed energy are given in Table II.

Above, around Figs. 7–9 we have discussed the significance of lateral gradients (applicability of local approximation) and have concluded that for $r_c > 500$ nm they are of small importance. The only place that should be checked in the future relates to matching between the molten spot and solid film outside the spot. Because the simulations from Table I have a narrow transition area outside the bump, which definitely increases the velocity $V_{c.m.}$, necessary to form a jet and thus decreases the distance from an origin to the jet-bump boundary in Fig. 4; here, we worry about the correspondence between theoretical and experimental jet-bump boundaries in Fig. 4.

The simulation shown in Fig. 7(b) doesn't include a cooling thermostat at the left and right lateral edges. Thus, it is difficult to imagine how the experimental situation may look above the threshold F_{rup} .

To be closer to experiment, the simulations box laterally extending around the molten spot is necessary. In our simulations presented in Table I the square simulation box is only 8% (the side of the square is 140 nm while the diameter of the circle is 130 nm) and 4% (270/260) larger than the circle of bump basement.

(i) The thermal sink should be placed far from the edge of the cupola. The sink supports $T = 300$ K. Thus, the melting and recrystallization front is somewhere in between the sink and the center of the hottest spot. Its radius increases quickly during the 2T stage, then for some time increases slowly, and after that begins to decrease at the

nanosecond time scale due to the gradually propagating recrystallization front. The distance of the order of the cupola radius from the edge of the cupola is enough for posting of the sink thanks to 2D spatial expansion of the cooling flux along the metal film from the hot spot to the cold peripheral region of the film.

(ii) Another important ingredient is the resistance of a solid film to its bending. This effect alone (even at zero cohesion) defines the value of the threshold for nanobump formation. The mass of a whole film is infinite, thus the finite amount of momentum directed to vacuum and transferred during the acoustic time scale inside an irradiated spot to the film is not enough for significant bumping; bending of the solid film has been considered in Refs. [41,42] for pulse-durations–thickness–film-material 30 fs/40 nm/Au and 30 ns/200 nm/SnO, respectively. To significantly bend a solid film, we have to melt it inside a spot having a rather significant size.

In Ref. [33] the simulation circle is 25 times larger (125 nm versus 5 nm) than the radius of the laser beam equal to $R_L = 5$ nm. Extremely large energy 3.1 J/cm² is injected into this laterally very small spot (the thickness of a Ni film is 20 nm). During the time interval t_{eq} (few picoseconds, duration of 2T stage) this energy spreads out radially filling up a spot with the radius of the order of thickness of a heat-affected zone in a bulk Ni target. After the equilibration of electron and ion temperatures, a coefficient of electron heat conduction in Ref. [33] drops down to its value κ_{ref} known from reference books. The value κ_{ref} isn't scaled down as it is described above in Sec. III. Therefore, the situation considered in Ref. [33] corresponds exactly to the case with the radius $R_L = 5$ nm. It cannot be applied to illuminations with optical radiuses R_L of the order of a few hundreds of nanometers and larger; because small-radius R_L and normal-conduction κ_{ref} suppress jet formation—a bump freezes too fast. Indeed, the value κ_{ref} in Ref. [33] is large, thus thermal velocity v_χ (3) is large for so small R_L . Then the relative thermal number V_κ (2) is large in spite of a huge injected energy 3.1 J/cm². In these conditions the bump begins to recrystallize quickly, it does not have time to develop a jet.

There is a common method [71] ($\ln E, R_{opt}^2$) used to measure the transverse radius R_{opt} of a laser beam, here E is a pulse energy. This procedure is based on the two assumptions: (i) the fixed modification degree of a target depends only on the local absorbed fluence and (ii) the fluence distribution may be approximated by a Gaussian function. However, for our conditions with a very small irradiation spot the first assumption is not accurate.

Let us discuss important data presented in Fig. 1(h) showing the dependence of the geometrical size of the corresponding type of the structure (marked with different colors) on the applied pulse-energy–absorbed fluence. The three colored parts of this dependence fitted with the straight lines have a different slope for fixed focusing

conditions ($R_{\text{opt}} = \text{const}$) used in all three fluence ranges, which means that the first assumption made in Ref. [71] is not applicable; there is significant nonlocal influence. Another important point is that the optical beam radius $R_{\text{opt}} = 630 \text{ nm}$ estimated using an expression $R_{\text{opt}} = 0.61\lambda (\text{NA})^{-1}$ differs from the approximate radius of $\approx 450 \text{ nm}$ derived for the bumps and jets in Fig. 1(h) by the common approach [71]. Let us restrict ourselves by discussion of the fluence range required to produce nanobumps and bumps with jets atop. Absorbed fluences are of the order of predicted in our simulations. The experimental bumps in Fig. 1(h) are formed above the threshold equal to $\approx 20 \text{ mJ/cm}^2$, while in the 1D approximation this value should be equal to 0 in the absence of cohesion. The value of 20 mJ/cm^2 slightly overcomes the melting threshold for our gold film; see Fig. 4. It seems that both the resistance to bending and some possible small cohesion contribute to the corresponding increase of the bumping threshold. Thus, it is not surprising that additional factors increase the thresholds relative to modeling. Therefore, the rupture threshold in Fig. 4(a) is shifted to its possible position in the point $F_{\text{abs}} \approx 60 \text{ mJ/cm}^2$, $\approx 110 \text{ m/s}$.

- [1] R. R. Gattass, L. R. Cerami, and E. Mazur, Micromachining of bulk glass with bursts of femtosecond laser pulses at variable repetition rates, *Opt. Express* **14**, 5279 (2006).
- [2] L. Shah, A. Y. Arai, S. M. Eaton, and P. R. Herman, Waveguide writing in fused silica with a femtosecond fiber laser at 522 nm and 1 MHz repetition rate, *Opt. Express* **13**, 1999 (2005).
- [3] L. Boinovich, A. Domantovskiy, A. Emelyanenko, A. Pashinin, A. Ionin, S. Kudryashov, and P. Saltuganov, Femtosecond laser treatment for the design of electro-insulating superhydrophobic coatings with enhanced wear resistance on glass, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **6**, 2080 (2014).
- [4] Z. Qian, A. Covarrubias, A. W. Grindal, M. K. Akens, L. Lilge, and R. S. Marjoribanks, Dynamic absorption and scattering of water and hydrogel during high-repetition-rate ($> 100 \text{ MHz}$) burst-mode ultrafast-pulse laser ablation, *Biomed. Opt. Express* **7**, 2331 (2016).
- [5] C. Kerse, H. Kalaycıoğlu, P. Elahi, B. Çetin, D. K. Kesim, Ö. Akçaalan, S. Yavaş, M. D. Aşık, B. Öktem, H. Hoogland, R. Holzwarth, and F. Ö. Ilday, Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses, *Nature (London)* **537**, 84 (2016).
- [6] Y.-C. Wang, J.-M. Shieh, H.-W. Zan, and C.-L. Pan, Near-infrared femtosecond laser crystallized poly-Si thin film transistors, *Opt. Express* **15**, 6982 (2007).
- [7] S. Haas, A. Gordijn, and H. Stiebig, High speed laser processing for monolithical series connection of silicon thin-film modules, *Prog. Photovolt: Res. Appl.* **16**, 195 (2008).
- [8] A. Vorobyev and C. Guo, Direct femtosecond laser surface nano/microstructuring and its applications, *Laser Photonics Rev.* **7**, 385 (2013).
- [9] U. Zywiets, A. B. Evlyukhin, C. Reinhardt, and B. N. Chichkov, Laser printing of silicon nanoparticles with resonant optical electric and magnetic responses, *Nat. Commun.* **5**, 34022 (2014).
- [10] C. W. Visser, R. Pohl, C. Sun, G.-W. Römer, and B. Huis in't Veld, and D. Lohse, Toward 3D printing of pure metals by laser-induced forward transfer, *Adv. Mater.* **27**, 4087 (2015).
- [11] P. A. Dmitriev, S. V. Makarov, V. A. Milichko, I. S. Mukhin, A. S. Gudovskikh, A. A. Sitnikova, A. K. Samusev, A. E. Krasnok, and P. A. Belov, Laser fabrication of crystalline silicon nanoresonators from an amorphous film for low-loss all-dielectric nanophotonics, *Nanoscale* **8**, 5043 (2016).
- [12] A. Kuchmizhak, O. Vitrik, Yu. Kulchin, D. Storozhenko, A. Mayor, A. Mirochnik, S. Makarov, V. Milichko, S. Kudryashov, V. Zhakhovsky, and N. Inogamov, Laser printing of resonant plasmonic nanovoids, *Nanoscale* **8**, 12352 (2016).
- [13] X. W. Wang, A. A. Kuchmizhak, E. Brasselet, and S. Juodkazis, Dielectric geometric phase optical elements from femtosecond direct laser writing, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 181101 (2017).
- [14] A. I. Kuznetsov, A. B. Evlyukhin, M. R. Gonçalves, C. Reinhardt, A. Koroleva, M. L. Arnedillo, R. Kiyani, O. Marti, and B. N. Chichkov, Laser fabrication of large-scale nanoparticle arrays for sensing applications, *ACS Nano* **5**, 4843 (2011).
- [15] M. Zenou, A. Sa'ar, and Z. Kotler, Laser transfer of metals and metal alloys for digital microfabrication of 3D objects, *Small* **11**, 4082 (2015).
- [16] R. Fang, A. Vorobyev, and C. Guo, Direct visualization of the complete evolution of femtosecond laser-induced surface structural dynamics of metals, *Light Sci. Appl.* **6**, e16256 (2017).
- [17] S. V. Makarov, M. I. Petrov, U. Zywiets, V. A. Milichko, D. A. Zuev, N. Lopanitsyna, A. Kuksin, I. Mukhin, G. Zograf, E. Ubyivovk, D. Smirnova, S. Starikov, B. N. Chichkov, and Y. S. Kivshar, Efficient second-harmonic generation in nanocrystalline silicon nanoparticle, *Nano Lett.* **17**, 3047 (2017).
- [18] C. Unger, J. Koch, L. Overmeyer, and B. N. Chichkov, Time-resolved studies of femtosecond-laser induced melt dynamics, *Opt. Express* **20**, 24864 (2012).
- [19] A. I. Kuznetsov, C. Unger, J. Koch, and B. N. Chichkov, Laser-induced jet formation and droplet ejection from thin metal films, *Appl. Phys. A* **106**, 479 (2012).
- [20] S. I. Ashitkov, N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, Yu. N. Emirov, M. B. Agranat, I. I. Oleinik, S. I. Anisimov, and V. E. Fortov, Formation of nanocavities in the surface layer of an aluminum target irradiated by a femtosecond laser pulse, *JETP Lett.* **95**, 176 (2012).
- [21] J. V. Oboña, V. Ocelík, J. C. Rao, J. Z. P. Skolski, G. R. B. E. Römer, and A. J. Huis in't Veld, and J. Th. M. De Hosson, Modification of Cu surface with picosecond laser pulses, *Appl. Surf. Sci.* **303**, 118 (2014).
- [22] Y. Nakata, N. Miyanaga, K. Momoo, and T. Hiromoto, Solid-liquid-solid process for forming free standing gold nanowhisker superlattice by interfering femtosecond laser irradiation, *Appl. Surf. Sci.* **274**, 27 (2013).
- [23] N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, and V. A. Khokhlov, Jet formation in spallation of metal film from substrate under

- action of femtosecond laser pulse, *J. Exp. Theor. Phys.* **120**, 15 (2015).
- [24] D. Yuan, R. Acharya, and S. Das, Fabrication of gold nanostructures through pulsed laser interference patterning, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 223101 (2013).
- [25] C. Wu, M. S. Christensen, J.-M. Savolainen, P. Balling, and L. V. Zhigilei, Generation of subsurface voids and a nanocrystalline surface layer in femtosecond laser irradiation of a single-crystal Ag target, *Phys. Rev. B* **91**, 035413 (2015).
- [26] D. S. Ivanov, V. P. Lipp, A. Blumenstein, F. Kleinwort, V. P. Veiko, E. Yakovlev, V. Roddatis, M. E. Garcia, B. Rethfeld, J. Ihlemann, and P. Simon, Experimental and Theoretical Investigation of Periodic Nanostructuring of Au with Ultra-short UV Laser Pulses Near the Damage Threshold, *Phys. Rev. Applied* **4**, 064006 (2015).
- [27] D. Shen, G. Zou, L. Liu, W. W. Duley, and Y. N. Zhou, Investigation of splashing phenomena during the impact of molten sub-micron gold droplets on solid surfaces, *Soft Matter* **12**, 295 (2016).
- [28] L. Chen, T. Zhai, X. Zhang, C. Unger, J. Koch, B. N. Chichkov, and P. J. Klar, Polarization-dependent SERS effects of laser-generated sub-100 nm antenna structures, *Nanotechnology* **25**, 265302 (2014).
- [29] C. Wu and L. Zhigilei, Nanocrystalline and polyicosahedral structure of a nanospire generated on metal surface irradiated by a single femtosecond laser pulse, *J. Phys. Chem. C* **120**, 4438 (2016).
- [30] N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, and K. P. Migdal, Laser-induced spalling of thin metal film from silica substrate followed by inflation of microbump, *Appl. Phys. A* **122**, 432 (2016).
- [31] M. E. Povarnitsyn, T. E. Itina, M. Sentis, K. V. Khishchenko, and P. R. Levashov, Material decomposition mechanisms in femtosecond laser interactions with metals, *Phys. Rev. B* **75**, 235414 (2007).
- [32] D. S. Ivanov, B. Rethfeld, G. M. O'Connor, T. J. Glynn, A. N. Volkov, and L. V. Zhigilei, The mechanism of nanobump formation in femtosecond pulse laser nanostructuring of thin metal films, *Appl. Phys. A* **92**, 791 (2008).
- [33] D. S. Ivanov, Zh. Lin, B. Rethfeld, G. M. O'Connor, T. J. Glynn, and L. V. Zhigilei, Nanocrystalline structure of nanobump generated by localized photoexcitation of metal film, *J. Appl. Phys.* **107**, 013519 (2010).
- [34] D. S. Ivanov, A. I. Kuznetsov, V. P. Lipp, B. Rethfeld, B. N. Chichkov, M. E. Garcia, and W. Schulz, Short laser pulse nanostructuring of metals: Direct comparison of molecular dynamics modeling and experiment, *Appl. Phys. A* **111**, 675 (2013).
- [35] C. Wu and L. Zhigilei, Microscopic mechanisms of laser spallation and ablation of metal targets from large-scale molecular dynamics simulations, *Appl. Phys. A* **114**, 11 (2014).
- [36] A. Kuchmizhak, E. Pustovalov, S. Syubaev, O. Vitrik, Y. Kulchin, A. Porfirev, S. Khonina, and S. Kudryashov, On-fly femtosecond-laser nanolithographic fabrication of self-organized plasmonic nanotextures for chemo- and biosensing applications, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **8**, 24946 (2016).
- [37] S. V. Makarov, A. O. Levchenko, A. A. Rudenko, I. N. Saraeva, D. A. Zayarny, C. R. Nathala, W. Husinsky, A. A. Ionin, and S. I. Kudryashov, Nanoscale surface boiling in sub-threshold damage and above-threshold spallation of bulk aluminum and gold by single femtosecond laser pulses, *Laser Phys. Lett.* **13**, 025603 (2016).
- [38] S. V. Starikov and V. V. Pisarev, Atomistic simulation of laser-pulse surface modification: Predictions of models with various length and time scales, *J. Appl. Phys.* **117**, 135901,1 (2015).
- [39] S. Babar and J. H. Weaver, Optical constants of Cu, Ag, and Au revisited, *Appl. Opt.* **54**, 477 (2015).
- [40] *Handbook of Optical Constants of Solids*, edited by E. D. Palik (Academic Press, New York, 1998).
- [41] Y. P. Meshcheryakov, M. V. Shugaev, T. Mattle, T. Lippert, and N. M. Bulgakova, Role of thermal stresses on pulsed laser irradiation of thin films under conditions of microbump formation and nonvaporization forward transfer, *Appl. Phys. A* **113**, 521 (2013).
- [42] Y. P. Meshcheryakov and N. M. Bulgakova, Thermoelastic modeling of microbump and nanojet formation on nanosize gold films under femtosecond laser irradiation, *Appl. Phys. A* **82**, 363 (2006).
- [43] *Handbook of Physical Constants*, edited by A. A. Radzig, I. S. Grigoriev, and E. Z. Meilikhov (CRC Press, Boca Roca, 1996).
- [44] Yu. N. Kulchin, O. B. Vitrik, A. A. Kuchmizhak, A. G. Savchuk, A. A. Nepomnyashchii, P. A. Danilov, D. A. Zayarny, A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, A. A. Rudenko, V. I. Yurovskikh, and A. A. Samokhin, Formation of nanobumps and nanoholes in thin metal films by strongly focused nanosecond laser pulses, *J. Exp. Theor. Phys.* **119**, 15 (2014).
- [45] P. A. Danilov, D. A. Zayarny, A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, A. A. Rudenko, V. I. Yurovskikh, Yu. N. Kulchin, O. B. Vitrik, A. A. Kuchmizhak, E. A. Drozdova, and S. B. Odinkov, Mechanisms of formation of sub- and micrometre-scale holes in thin metal films by single nano- and femtosecond laser pulses, *Quantum Electron.* **44**, 540 (2014).
- [46] N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, A. Y. Faenov, V. A. Khokhlov, V. V. Shepelev, I. Y. Skobelev, Y. Kato, M. Tanaka, T. A. Pikuz, M. Kishimoto, M. Ishino, M. Nishikino, Y. Fukuda, S. V. Bulanov, T. Kawachi, Yu. V. Petrov, S. I. Anisimov, and V. E. Fortov, Spallative ablation of dielectrics by x-ray laser, *Appl. Phys. A* **101**, 87 (2010).
- [47] E. T. Karim, M. V. Shugaev, C. Wu, Z. Lin, H. Matsumoto, M. Conneran, J. Kleinert, R. F. Hainsey, and L. V. Zhigilei, Experimental characterization and atomistic modeling of interfacial void formation and detachment in short pulse laser processing of metal surfaces covered by solid transparent overlayers, *Appl. Phys. A* **122**, 407 (2016).
- [48] N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, V. A. Khokhlov, S. I. Ashitkov, Y. N. Emirov, K. V. Khichshenko, A. Ya. Faenov, T. A. Pikuz, M. Ishino, M. Kando, N. Hasegawa, M. Nishikino, P. S. Komarov, B. J. Demaske, M. B. Agranat, S. I. Anisimov, T. Kawachi, and I. I. Oleynik, Ultrafast lasers and solids in highly excited states: Results of hydrodynamics and molecular dynamics simulations, *J. Phys. Conf. Ser.* **510**, 012041 (2014).
- [49] D. K. Ilnitskiy, V. A. Khokhlov, V. V. Zhakhovsky, Yu. V. Petrov, K. P. Migdal, and N. A. Inogamov, Dynamics of

- laser ablation at the early stage during and after ultrashort pulse, *J. Phys. Conf. Ser.* **774**, 012101 (2016).
- [50] S. Amoruso, N. N. Nedyalkov, X. Wang, G. Ausanio, R. Bruzzese, and P. A. Atanasov, Ultrafast laser ablation of gold thin film targets, *J. Appl. Phys.* **110**, 124303 (2011).
- [51] S. Amoruso, N. N. Nedyalkov, X. Wang, G. Ausanio, R. Bruzzese, and P. A. Atanasov, Ultrashort-pulse laser ablation of gold thin film targets: Theory and experiment, *Thin Solid Films* **550**, 190 (2014).
- [52] V. V. Zhakhovskii, N. A. Inogamov, Yu. V. Petrov, S. I. Ashitkov, and K. Nishihara, Molecular dynamics simulation of femtosecond ablation and spallation with different interatomic potentials, *Appl. Surf. Sci.* **255**, 9592 (2009).
- [53] N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, V. A. Khokhlov, A. A. Kuchmizhak, and S. I. Kudryashov, Blistering of film from substrate after action of ultrashort laser pulse, *J. Phys. Conf. Ser.* **774**, 012102 (2016).
- [54] M. Malinauskas, A. Žukauskas, S. Hasegawa, Y. Hayasaki, V. Mizeikis, R. Buividas, and S. Juodkazis, Ultrafast laser processing of materials: From science to industry, *Light Sci. Appl.* **5**, e16133 (2016).
- [55] K. Toyoda, F. Takahashi, S. Takizawa, Yu. Tokizane, K. Miyamoto, R. Morita, and T. Omatsu, Transfer of Light Helicity to Nanostructures, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 143603 (2013).
- [56] M. G. Rahimian, F. Bouchard, H. Al-Khazraji, E. Karimi, P. B. Corkum, and V. R. Bhardwaj, Polarization dependent nanostructuring of silicon with femtosecond vortex pulse, *APL Photonics* **2**, 086104 (2017).
- [57] S. Syubaev, A. Zhizhchenko, A. Kuchmizhak, A. Porfirev, E. Pustovalov, O. Vitrik, Yu. Kulchin, S. Khonina, and S. Kudryashov, Direct laser printing of chiral plasmonic nanojets by vortex beams, *Opt. Express* **25**, 10214 (2017).
- [58] J. J. Nivas, F. Cardano, Z. Song, A. Rubano, R. Fittipaldi, A. Vecchione, D. Paparo, L. Marrucci, R. Bruzzese, and S. Amoruso, Surface structuring with polarization-singular femtosecond laser beams generated by a q -plate, *Sci. Rep.* **7**, 42142 (2017).
- [59] E. Skoulas, A. Manousaki, C. Fotakis, and E. Stratakis, Biomimetic surface structuring using cylindrical vector femtosecond laser beams, *Sci. Rep.* **7**, 45114 (2017).
- [60] A. Vailionis, E. G. Gamaly, V. Mizeikis, W. Yang, A. Rode, and S. Juodkazis, Evidence of super-dense aluminum synthesized by ultra-fast micro-explosion, *Nat. Commun.* **2**, 445 (2011).
- [61] L. Rapp, B. Haber, C. J. Pickard, J. E. Bradby, E. G. Gamaly, J. S. Williams, and A. V. Rode, Experimental evidence of new tetragonal polymorphs of silicon formed through ultrafast laser-induced confined microexplosion, *Nat. Commun.* **6**, 7555 (2015).
- [62] M. Hase, P. Fons, K. Mitrofanov, A. V. Kolobov, and J. Tominaga, Femtosecond structural transformation of phase-change materials far from equilibrium monitored by coherent phonons, *Nat. Commun.* **6**, 8367 (2015).
- [63] E. Matsubara, S. Okada, T. Ichitsubo, T. Kawaguchi, A. Hirata, P. F. Guan, K. Tokuda, K. Tanimura, T. Matsunaga, M. W. Chen, and N. Yamada, Initial Atomic Motion Immediately Following Femtosecond-Laser Excitation in Phase-Change Materials, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 135501 (2016).
- [64] L. Zhong, J. Wang, H. Sheng, Z. Zhang, and S. X. Mao, Formation of monatomic metallic glasses through ultrafast liquid quenching, *Nature (London)* **512**, 177 (2014).
- [65] V. A. Khokhlov, V. V. Zhakhovsky, K. V. Khishchenko, N. A. Inogamov, and S. I. Anisimov, Metal film on substrate: dynamics under action of ultra-short laser pulse, *J. Phys. Conf. Ser.* **774**, 012100 (2016).
- [66] B. J. Demaske, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, and I. I. Oleynik, Ablation and spallation of gold films irradiated by ultrashort laser pulses, *Phys. Rev. B* **82**, 064113 (2010).
- [67] A. K. Upadhyay, N. A. Inogamov, B. Rethfeld, and H. M. Urbassek, Ablation by ultrashort laser pulses: Atomistic and thermodynamic analysis of the processes at the ablation threshold, *Phys. Rev. B* **78**, 045437 (2008).
- [68] N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, S. I. Ashitkov, V. A. Khokhlov, Yu. V. Petrov, P. S. Komarov, M. B. Agranat, S. I. Anisimov, and K. Nishihara, Two-temperature relaxation and melting after absorption of femtosecond laser pulse, *Appl. Surf. Sci.* **255**, 9712 (2009).
- [69] W.-L. Chan, R. S. Averbach, and D. G. Cahill, Nonlinear energy absorption of femtosecond laser pulses in noble metals, *Appl. Phys. A* **97**, 287 (2009).
- [70] N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, and V. A. Khokhlov, in *Proceedings of the Progress In Electromagnetics Research Symposium (PIERS)*, Prague, Czech Republic, 2015 [<http://piers.org/piersproceedings/piers2015PragueProc.php>], pp. 2413–2417.
- [71] J. M. Liu, Simple technique for measurements of pulsed Gaussian-beam spot sizes, *Opt. Lett.* **7**, 196 (1982).