

УДК 544.032.65

МОДЕЛЬ ПОДПОВЕРХНОСТНОГО ПЕРЕГРЕВА ПРИ ЛАЗЕРНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ НА УГЛЕРОДНЫЕ ОБРАЗЦЫ В ЖИДКОМ АЗОТЕ

© 2017 г. К. С. Хорьков, М. Ю. Звягин, Д. А. Кочуев, Р. В. Чкалов,
С. М. Аракелян, В. Г. Прокошев

*Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
Владимирский государственный университет имени А.Г. и Н.Г. Столетовых
E-mail: freeod@mail.ru*

Предложена имитационная модель качественного характера, описывающая подповерхностный перегрев при воздействии фемтосекундного лазерного излучения в среде жидкого азота на углеродные образцы и обладающая в значительной степени универсальностью применения. Отличительное свойство данной модели – интерактивный принцип управления, позволяющий адаптировать исследуемые характеристики к наблюдаемым экспериментальным данным.

DOI: 10.7868/S0367676517120109

ВВЕДЕНИЕ

Процессы, протекающие при воздействии и распространении фемтосекундного лазерного излучения, определяют широту использования методик и техник создания, формирования и управления свойствами микро- и наноструктур. Применение ультракоротких лазерных импульсов позволяет многократно повысить точность и прогнозирование результата обработки. Обладая высокой энергией в сочетании с ультракороткой длительностью, импульсное лазерное излучение позволяет достичь локальных условий в области воздействия, достаточных для удаления, структурирования или изменения фазового состава материала. Фемтосекундная лазерная абляция является одним из наиболее распространенных и применяемых лазерных методов удаления материала. За довольно продолжительное время изучения данного сложного, мультимасштабного по характеру явления сформированы основные механизмы фемтосекундной лазерной абляции, приведено их феноменологическое описание, а также установлена иерархия протекающих взаимосвязанных процессов [1–3]. Однако построение целостной картины – от поглощения энергии ультракороткого лазерного импульса до термической релаксации системы – полностью не осуществлено, что связано с неопределенностью последовательности запуска и временных масштабов протекающих процессов.

Конструирование таких моделей, в частности при использовании фемтосекундного лазерного излучения, усложняется за счет попытки учета как можно большего количества параметров

рассматриваемого явления и условий экспериментов. Формируется не одна модель, а иерархическая структура, компоненты которой сами являются моделями некоторых взаимосвязанных процессов и явлений. Конечно достигаются и определенная точность, и достаточная универсальность в применении комплексных моделей, однако часто возникают чрезмерные сложности в их реализации. Они связаны не только с трудностями решения самих уравнений, некоторые численные расчеты чересчур громоздки и непригодны для анализа экспериментальных данных, но и с проблемами определения коэффициентов и значений конкретных параметров, которые в эти уравнения входят. Особенно это чувствуется в том случае, когда модель проецируется на описание какого-нибудь одного параметра или значения, например, в соответствии с задачей конкретного случая – определения распространения температурного фронта внутри образца вблизи поверхности, на которую воздействует лазерное излучение. При этом комплексная модель является наложением идеализацией других моделей, описывающих отдельные физические процессы. Что же касается реального эксперимента, то результат часто искажен влиянием неучтенных факторов, неизвестных коэффициентов или ошибок в определении параметров эксперимента.

1. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ДАННЫЕ

Иницируемые процессы при воздействии фемтосекундного лазерного излучения на образцы, охлажденные до температур жидкого азота,

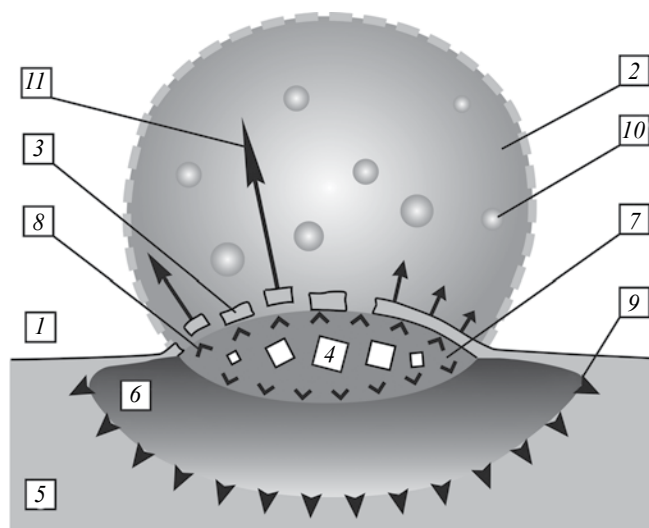


Рис. 1. Схема физических процессов подповерхностного перегрева при взаимодействии фемтосекундного лазерного излучения в жидком азоте с углеродным материалом: 1 – жидкий азот; 2 – парогазовая область, область “эффективного” теплообмена поверхности образца, продуктов абляции с объемом жидкого азота; 3 – приповерхностный слой; 4 – углеродные микрокристаллы; 5 – мишень из стеклоуглерода; 6 – область теплоотвода в объеме материала; 7 – область подповерхностного перегрева; 8 – фронт распространения/роста давления; 9 – фронт распространения температуры за счет теплопроводности; 10 – испарившийся азот; 11 – направление разлета материала поверхностного слоя.

существенно отличаются от воздействия при нормальных условиях в среде атмосферного воздуха. Это может быть связано с изменением времени электрон-фононного взаимодействия в результате сильного охлаждения материала. Ввиду данного факта возникает вопрос о применимости общепринятой цепочки последовательности событий или явлений, протекающих при лазерной абляции ультракороткими лазерными импульсами при нормальных условиях, их доминировании и времени протекания каждого конкретного процесса. Опираясь на результаты проведенных экспериментов [4], можно сделать вывод о резком увеличении температуры и давления, сопровождающемся изменением фазового состава на некоторой глубине образца, с последующим разлетом образованных объемных кристаллических структур на поверхность. Можно предположить, что времена формирования кристаллических структур значительно больше, чем время воздействия одного фемтосекундного лазерного импульса. Энерговклад от одиночного импульса также недостаточен для роста подобной структуры, следовательно, происходит накопление энергии в подповерхностном слое, стимулирующее рост кристаллов до определенного момента (до разлета структур при вскрытии поверхности в результате преодоления порога

разности давлений, значительном превышении напряжений и др.), следовательно, можно считать, что и некоторые расчеты [5], сделанные для наносекундной лазерной абляции справедливы и в нашем случае.

На рис. 1 схематично представлена динамика развития физических процессов. Во время воздействия фемтосекундного лазерного импульса происходит передача энергии электронной подсистеме материала. Длительность данного процесса сопоставима с длительностью лазерного импульса. Происходит образование фотоэлектронной лавины с последующей передачей энергии посредством электрон-фононного взаимодействия. Рост напряженного состояния кристаллической решетки вызван нестационарным ростом температуры и давления в области перераспределения электрон-фононной энергии. Процесс расширения данной области должен развиваться равномерно по всем направлениям относительно условного центра, однако такого не происходит ввиду сильно неравновесных условий данной системы. Рост данной области в глубь материала ограничен “подвижностью” решетки ввиду сильного “захолаживания” объема образца, отвод тепла, в свою очередь, ограничен теплопроводностью. Объемное расширение материала в среде жидкого азота происходит более интенсивно ввиду меньшей плотности среды. Таким образом, в направлении среды (жидкого азота) формируются условия, способствующие охлаждению поверхности образца (падение давления, расширение участка материала в менее плотную среду, теплообмен со средой и др.). В направлении объема основного материала ввиду незначительного теплоотвода и невозможности расширения вглубь образуются условия для значительного роста температуры и давления, что в свою очередь приводит к структурным изменениям решетки материала. Описанный механизм протекания процессов, сопутствующих энергообмену в системе, хорошо коррелирует с результатами экспериментальных исследований.

В качестве основы для модели, описывающей подповерхностный перегрев, взяты условия экспериментов из статьи [4], где использовалась фемтосекундная лазерная система со следующими параметрами: длина волны 800 нм, длительность импульса излучения 50 фс, частота повторения импульсов 1 кГц, средняя мощность 0.5 Вт. Для крепления и последующего охлаждения углеродных образцов был собран открытый криостат. После термостабилизации (охлаждения) образца производили обработку лазерным излучением при варьируемой толщине слоя жидкого азота. В качестве образцов использовали высокоориентированный пиролитический графит и стеклоуглерод.

Таким образом, совокупность процессов и механизмов, возникающих при воздействии фемтосекундного лазерного излучения на углеродные образцы в жидком азоте, содержат слишком много обстоятельств и условий, которые влияют на конечный результат. Учет всех факторов, начиная от процессов рассеяния лазерного излучения на парах азота, пространственной модуляции лазерного пучка, особенностей взаимодействия фемтосекундного лазерного излучения с низкотемпературными образцами и других сопутствующих эксперименту процессов, не представляется возможным, по крайней мере, на данном этапе исследований. Также не представляется возможным: 1) построение собственной адекватной и всеохватывающей модели эксперимента; 2) корректное включение эксперимента, в какую-либо из имеющихся известных моделей [1–3]. Поэтому в соответствии с существующими обстоятельствами была поставлена цель построения некоторой весьма упрощенной модели/конструкции, которая не охватывает все стороны явления, но, тем не менее, обеспечивает достаточно адекватное моделирование принципиально важного для описания и анализа эксперимента такого процесса как подповерхностный перегрев и, как часть картины, изменение фазового состава материала. В результате строится модель “одного свойства”.

В качестве особенностей предлагаемого подхода моделирования можно выделить следующие аспекты:

- во-первых, предполагается наличие некоторых областей неопределенности Δ_t - и Δ_x -зон, временных и пространственных соответственно;

- во-вторых, предлагается использование усредненных значений параметров (в уравнениях коэффициенты полагаются постоянными);

- в-третьих, неизбежное при описанных обстоятельствах использование настроенных параметров.

2. МОДЕЛЬ ПОДПОВЕРХНОСТНОГО ПЕРЕГРЕВА ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ НА МИШЕНЬ СЕРИИ УЛЬТРАКОРОТКИХ ИМПУЛЬСОВ

2.1. ВРЕМЕННАЯ Δ_t -ЗОНА

Рассмотрим бесконечную прямую, отрезок $[0,1]$ моделирует мишень (по глубине); лазерное излучение падает нормально к поверхности образца; левый конец отрезка соответствует поверхности мишени. Считаем, что начальное распределение температуры на всей прямой равно нулю. Вложение энергии

ультракороткого импульса приводит к нагреву электронной подсистемы внутри мишени, после чего происходит передача энергии фононной решетке (релаксация) и теплообмен. Все это описывается хорошо известной двухтемпературной моделью [5]. То есть выделяется некоторая временная Δ_t -зона – этап вложения энергии импульса и релаксации. Она является крайне короткой в масштабах всего процесса обработки мишени серией импульсов (до нескольких секунд с частотой следования импульсов 1 кГц).

2.2. РЕАЛИЗАЦИЯ 1 (БАЗОВЫЙ СЦЕНАРИЙ)

Рассмотрим ситуацию воздействия на мишень одним импульсом. Полагаем, что функция распределения температуры $u(x, t - \tau_1) = 0$ при $t < \tau_1$. В момент времени τ_1 ультракороткий импульс воздействует на мишень. Далее происходит нагревание электронного облака и последующая релаксация. В результате формируется температурный профиль мишени (начальное условие). После чего в соответствии с уравнением теплопроводности (однородным) при $t \geq \tau_1$ происходит процесс охлаждения. В результате весьма короткого промежутка времени (в масштабах всего процесса обработки мишени серией импульсов) реализуется некоторый температурный профиль. При этом динамика его формирования не вполне понятна. Поэтому предлагается просто считать, что в момент τ_1 реализовано начальное условие $u(x, 0) = \varphi(x)$, где $\varphi(x)$ – начальная функция; в данном случае Δ_t -зона игнорируется. Решение однородного уравнения теплопроводности $u_t = a^2 u_{xx}$, нулевое при $t < \tau_1$ при $t > \tau_1$ может быть выражено при помощи интеграла Пуассона:

$$u(x, t - \tau_1) = \frac{1}{2a\sqrt{\pi(t - \tau_1)}} \cdot \int_0^{+\infty} e^{-\frac{(x-y)^2}{4a^2(t-\tau_1)}} \varphi(y) dy. \quad (1)$$

Далее, в последующий момент времени $\tau_2 > \tau_1$, приходит новый импульс. Он рассматривается самостоятельно, отдельно от предыдущего, но при аналогичных условиях. В результате при $t \geq \tau_2$, уже при наличии воздействия двух импульсов, температура получается при помощи наложения обоих решений (принцип суперпозиции) и т.д.

Ставится задача – найти температурный профиль в момент времени t . Известны моменты времени, когда происходят ультракороткие импульсы $\{\tau_k\}$, удовлетворяющие условию $\tau_k < t$. Тогда профиль выражается формулой:

$$\tilde{u}(x, t) = \sum_{\{\tau_k\}} u(x, t - \tau_k) = \sum_{\{\tau_k\}} \left(\frac{1}{2a\sqrt{\pi(t - \tau_k)}} \cdot \int_0^{+\infty} e^{-\frac{(x-y)^2}{4a^2(t-\tau_k)}} \varphi(y) dy \right). \quad (2)$$

2.3. ПРОСТРАНСТВЕННАЯ Δ_x -ЗОНА

Существенная особенность рассматриваемого подхода – отказ от использования граничных условий, которые являются неперенным атрибутом в изучении теплообменных процессов при нагреве, например, наносекундными импульсами. Эта весьма грубая, но очень простая конструкция, которая потребует некоторых дальнейших усовершенствований.

Как уже говорилось, при фемтосекундных лазерных импульсах передача энергии мишени происходит по цепочке фотон-электрон-фононного взаимодействия. Далее, после установления равновесия, процессы носят предопределенный характер и представляют собой классический вариант теплообмена. Однако сложные процессы, происходящие на границе мишени, не позволяют применять принятые подходы моделирования теплообмена со средой с использованием граничных условий, по крайней мере, без дополнительного серьезного анализа. Само понятие “поверхность мишени”, рассматриваемое с точки зрения теплообмена, представляется избыточным упрощением. Речь не идет о каких-то условиях, накладываемых непосредственно на температурный профиль внутри мишени. Требования налагаются на виртуальные продолжения распределения температуры за пределы мишени. Условно можно считать так: вместо мишени рассматривается некоторое “условное тело”, граница которого получается при помощи продолжения границы мишени вовне, на некоторую фиксированную величину. При этом предполагается, что тепловые свойства за границей мишени такие же, как и внутри самой мишени. Зона неопределенности, которая возникает между границей “условного тела” и поверхностью

мишени, и понимается нами как Δ_x -зона. Конечно ее можно назвать поверхностным слоем, но, на наш взгляд, это не вполне корректно.

Будем искать решения уравнения, которые на границе “тела” достигают некоторых форм равновесия. Сначала рассматриваем два типа равновесия. Первый тип – на границе тела достигается и поддерживается температура среды, т.е. она равна нулю. Второй тип равновесия – на границе всегда равен нулю градиент; считается, что тело теплоизолированное. Иными словами, граничные условия все же вводятся, но не на поверхности мишени и носят виртуальный характер; образуется некоторая зона неопределенности между границами мишени и условного тела. Рассматриваем простейший вариант. Полагаем, что тепловые характеристики “зоны” тождественны свойствам материала мишени. Это позволит пользоваться уравнением теплопроводности для всего “условного тела”. Подход привлекателен прежде всего тем, что порождает температурные профили, которые реализуются простыми явными формулами.

2.4. РЕАЛИЗАЦИЯ 2 (ВЫБОР РЕШЕНИЯ С НЕКОТОРЫМИ СПЕЦИАЛЬНЫМИ СВОЙСТВАМИ)

В точки $x = 0$ (поверхность мишени) и $x = -\Delta_x$ (граница условного тела) помещаем правую и левую границы слоя. С точки зрения аналитического представления формулы практически ничем не отличаются от выражений, используемых выше. Приводим итоговые формулы для случая одного импульса, происходящего в момент времени τ (см. выше). Нижний знак соответствует первому типу равновесия, верхний – второму.

$$U(x, t - \tau) = \frac{1}{2a\sqrt{\pi(t - \tau)}} \cdot \int_0^{+\infty} \left(e^{-\frac{(x-y)^2}{4a^2(t-\tau)}} \pm e^{-\frac{(x+y+2\Delta_x)^2}{4a^2(t-\tau)}} \right) \varphi(y) dy. \tag{3}$$

Решения $U_{1,\Delta_x}(x, t - \tau), U_{2,\Delta_x}(x, t - \tau)$ соответствуют первому и второму типам равновесия. Их линейная комбинация $\gamma \cdot U_{1,\Delta_x}(x, t - \tau) + (1 - \gamma) \cdot U_{2,\Delta_x}(x, t - \tau)$, где γ – параметр профиля распределения, также является решением уравнения. При этом начальные условия естественно сохраняются, чего нельзя сказать про условия на границе тела. Например, если взять $\Delta_x = 0, \gamma = 0.5$, то решение совпадет с базовым вариантом – решением задачи без граничных условий (см. выше).

Итак: во-первых, вид теплообмена мишени со средой существенно влияет на формирование температурных профилей внутри мишени; во-вторых,

реальный способ взаимодействия остается неясным, и это носит объективный характер. Возникает альтернатива: либо приложить существенные усилия для попытки описания теплообмена мишени со средой, не обязательно через использование граничных условий на поверхности мишени, либо оставить параметры Δ_x, γ свободными и использовать как ресурс настройки. Например, можно изначально предположить $\Delta_x = 0$. Тогда профили $U_{1,0}(x, t - \tau), U_{2,0}(x, t - \tau) (x \geq 0)$, по всей видимости, следует считать виртуальными. А вот $\gamma \cdot U_{1,0}(x, t - \tau) + (1 - \gamma) \cdot U_{2,0}(x, t - \tau)$ в некотором диапазоне γ – возможно уже моделями реальных

профилей. Консолидированная формула, используемая для серии импульсов, аналогична (2).

В качестве первого приближения для выбора функции $\varphi(x)$ воспользуемся стандартным подходом $\varphi(x) = (1 - R)I_0 \cdot \alpha e^{-\alpha x}$, где R – коэффициент отражения, I_0 интенсивность (плотность мощности) излучения. Настройка системы будет происходить на основании выбора подходящего коэффициента поглощения α , поскольку данный параметр регулирует форму профиля модели. Несомненно, возможно использование и более сложной функции поглощения, поэтому впоследствии допускается некое

модифицирование системы, однако на данном этапе речь идет только о выборе α , остальные коэффициенты представляют собой постоянные величины и не играют существенной роли.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Целесообразно представить (3) в виде суммы решений базового сценария и слагаемого, которое используется из предположений наличия некоторой Δ_x -зоны и ее влияния на температурный профиль внутри мишени:

$$U(x, t - \tau) = u(x, t - \tau) + (2\gamma - 1) \cdot \frac{1}{2a\sqrt{\pi(t - \tau)}} \int_0^{+\infty} e^{-\frac{(x+y+2\Delta_x)^2}{4a^2(t-\tau)}} \varphi(y) dy. \quad (4)$$

Каждый импульс формирует одинаковое типовое начальное условие $\varphi(x) = (1 - R)I_0 \cdot \alpha e^{-\alpha x}$. Нам интересен процесс накопления температуры.

При значении коэффициента поглощения $\alpha = 0$ начальное условие представляет собой некоторый постоянный уровень температуры. Процесс охлаждения вызывает уменьшение температуры поверхности мишени. С течением времени температурный фронт смещается в глубь мишени. Через некоторое время приходит следующий импульс, который вносит свой энергетический вклад, увеличивающий температуру мишени. Таким образом, воздействие каждого последующего импульса приводит к наложению на предыдущий уровень температуры, и область перегрева смещается к поверхности образца. После получения очередной порции энергии температурный фронт будет смещаться в глубь мишени за счет теплопроводности материала.

Сложнее устроен процесс накопления энергии – $\alpha > 0$. После передачи энергии первого импульса решетке материала формируется типовое начальное условие в виде убывающей экспоненты, связанное с теплопроводностью образца. Охлаждение на границе в связи с процессами, описанными выше, вызывает уменьшение значения температуры в области поверхности мишени. Воздействие второго лазерного импульса приводит к формированию точно такого же температурного профиля, как и воздействия предыдущего, в результате чего происходит наложение нового профиля импульса на уже распространяющийся. При условии, что энергии одного импульса недостаточно для перегрева на границе, происходит инициирование процесса подповерхностного перегрева в глубь мишени. Данный процесс носит кумулятивный характер и зависит от энергии, количества импульсов,

частоты их следования, а также от условий охлаждения на границе мишени.

Таким образом, использование при моделировании дополнительного слагаемого, описывающего пространственную Δ_x -зону, позволяет обеспечить достижение такого баланса энергий, при котором происходит подповерхностный перегрев.

На рис. 2 представлен график зависимости температуры от глубины образца при воздействии серии фемтосекундных лазерных импульсов, построенный в соответствии с предложенной моделью. Данный график описывает распределение температурного фронта в результате воздействия ста импульсов, достигших поверхности мишени. При задании параметров расчета можно получить распределение температуры, при котором возможны фазовые превращения.

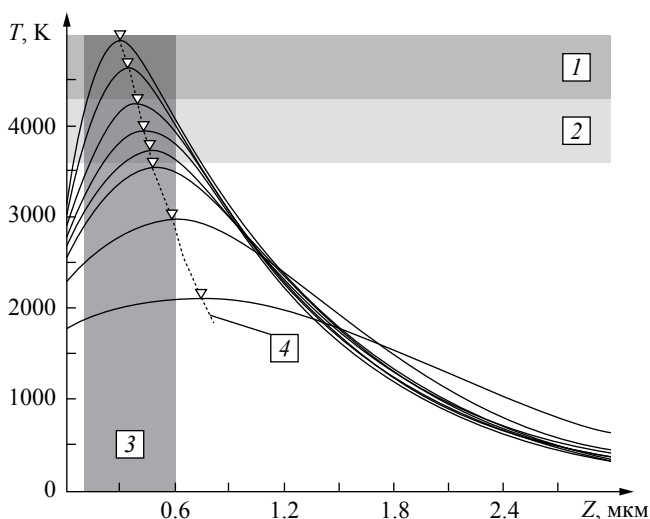


Рис. 2. График зависимости изменения температурного состояния в подповерхностном слое образца.

На рисунке отмечены области, соответствующие реальному физическому состоянию математической модели. Цифрой 1 обозначена область развития фазового взрыва при достижении большой температуры и давления (параметр давления в данной модели не учитывался, но в реальном эксперименте он имеет весомое значение). Область подповерхностного перегрева 2, в объеме которой под действием температуры и давления могут происходить фазовые превращения углерода, образование углеродных кристаллов, в частности. Область 3 обозначает расположение зон возможных фазовых превращений на некотором расстоянии от поверхности при достижении необходимых температурных условий. Кривая 4 отражает динамику смещения зоны максимальной температуры к поверхности образца относительно приложенной энергии.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработанная модель подповерхностного перегрева позволяет производить качественную оценку распределения температуры в объеме материала. Моделируется распределение температуры в результате передачи энергии решетке материала и проявление теплового эффекта в объеме мишени при серии фемтосекундных лазерных импульсов. Подтверждается явление подповерхностного перегрева. Используя интерактивный принцип управления, возможна адаптация модели как к различным условиям эксперимента, так и к исследуемым

явлениям в соответствии с наблюдаемыми экспериментальными данными. Для более точных физических оценок необходимо дополнительно провести оценку давления, оказывающего исключительное влияние на рост температуры в рассматриваемой области. Таким образом, для повышения точности оценки результата воздействия фемтосекундного лазерного излучения при низких температурах, необходимо осуществить переход к многофакторной оценке протекающих процессов.

Работа была выполнена в рамках государственного задания ВлГУ ГБ-1106/17, а также при поддержке гранта Российского фонда фундаментальных исследований 16-32-00760 мол_а.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Ионин А.А., Кудряшов С.И., Самохин А.А.* // УФН. 2017. Т. 187. № 2. С. 159.
2. *Анисимов С.И., Лукьянчук Б.С.* // УФН. 2002. Т. 172. № 3. С. 301.
3. *Shugaev M.V., Wu C., Armbruster O. et al.* // MRS Bull. 2016. V. 41. № 12. P. 960.
4. *Khorkov K.S., Abramov D.V., Kochuev D.A. et al.* // Phys. Proc. 2016. V. 83. P. 182.
5. *Булгаков Л.В., Булгакова Н.М., Бураков И.М. и др.* Синтез наноразмерных материалов при воздействии мощных потоков энергии на вещество. Новосибирск: Институт теплофизики СО РАН, 2009. 462 с.