

## Начальная стадия развития трехмерных периодических структур при лазерном плавлении

С.И.Долгаев, Н.А.Кириченко, А.В.Симакин, Г.А.Шафеев

*Проведено моделирование начальной стадии развития трехмерных периодических структур, возникающих при лазерном плавлении твердых тел. Показано, что неоднородность температуры, вызванная вариацией коэффициента отражения вдоль капиллярной волны, приводит к самосогласованному перемещению расплава под действием градиента температуры, обусловленного температурной зависимостью коэффициента поверхностного натяжения. На основании численного решения упрощенного уравнения Навье–Стокса исследована трансформация начального синусоидального возмущения поверхности расплава на стадиях самосогласованного лазерного нагрева и последующего остывания. Найденная форма поверхности хорошо согласуется с экспериментальными данными.*

**Ключевые слова:** лазерное плавление, периодические структуры, эволюция трехмерных структур.

Для развития трехмерных периодических структур, возникающие на поверхности твердых тел при многоимпульсном лазерном воздействии, требуется некоторое пороговое число импульсов с плотностью энергии, превышающей порог плавления мишени. Массивы микроконусов, возвышающихся над поверхностью мишени, наблюдались, прежде всего, при лазерной абляции Si в вакууме [1–3] и в атмосфере химически-активных газов [4–7]. Позже аналогичные структуры были реализованы на более широком классе материалов, таких как Ge, Ti, W, Mo, нержавеющая сталь и т. д. [8, 9]. Резкая зависимость амплитуды структур от числа лазерных импульсов предполагает наличие неустойчивости в системе. Число импульсов, необходимое для развития микроконусов, варьируется от  $10^3$  до  $10^4$  в зависимости от длины волны лазерного излучения. В то же время наблюдаемый пространственный период структур практически одинаков в широком диапазоне длин волн и составляет около 20 мкм, что позволяет связать процесс роста структур с материальными константами самого материала. В работе [3] было высказано предположение, что предшественниками трехмерных периодических структур являются капиллярные волны на поверхности расплавленной мишени. Однако механизм обратной связи, приводящий к росту таких структур из капиллярных волн, исследован не был.

В настоящей работе предложен механизм, описывающий начальную стадию роста трехмерных периодических структур и состоящий в возрастании неоднородности температурного поля на поверхности твердого тела. Показано, что неоднородность, вызванная вариацией коэффициента отражения вдоль капиллярной волны, приводит к самосогласованному перемещению расплава под

действием градиента температуры, обусловленного температурной зависимостью коэффициента поверхностного натяжения.

Образование микроконусов, возвышающихся над поверхностью твердого тела, предполагает пространственное перемещение значительных количеств вещества, что может иметь место лишь в жидкой фазе и не может быть объяснено процессами абляции и осаждения. Увеличение амплитуды рельефа поверхности обнаруживается не только при формировании микроконусов, но и на более ранних стадиях, а именно на стадии капиллярных волн, т. е. с увеличением числа импульсов их амплитуда возрастает.

Выполним оценки неоднородности температурного поля на поверхности капиллярных волн. При глубине модуляции рельефа, равной лишь 3%, разность температур на вершине (впадине) рельефа и на его склоне, обусловленная угловой зависимостью коэффициента отражения, составляет менее 1 К. Однако поскольку эта разность температур приходится на расстояние порядка 10 мкм, то градиент температуры, действующий вдоль поверхности, равен нескольким сотням К/см. Такие градиенты температуры вполне достаточны для быстрого направленного перемещения расплава за время его существования. Насколько нам известно, этот механизм возникновения течения расплава до сих пор не исследовался, несмотря на большое число работ по термокапиллярной неустойчивости при лазерном нагреве и плавлении твердых тел [10–12]. Рассмотрим процесс формирования рельефа поверхности в рамках следующей приближенной модели.

На начальной стадии форма поверхности близка к синусоидальной, и максимумы температуры поверхности имеют место как на вершинах, так и во впадинах рельефа при относительно более холодных склонах. Эта вариация температуры обусловлена зависимостью поглощаемой интенсивности излучения от угла падения. Направление вектора градиента температуры вдоль поверхности расплава изменяется по мере эволюции структуры. В свою очередь, сама структура формируется под влиянием градиента температуры, и в этом смысле за-

С.И.Долгаев, Н.А.Кириченко, А.В.Симакин, Г.А.Шафеев. Научный центр волновых исследований Института общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: wrc@kapella.gpi.ru

Поступила в редакцию 26 июня 2003 г., после доработки – 28 мая 2004 г.

дача об эволюции формы поверхности при большом числе лазерных импульсов является самосогласованной.

В общем случае задача об изменении формы поверхности вещества включает в себя уравнение переноса тепла, учитывающее зависимость поглощения излучения от температуры и геометрии поверхности, уравнение, описывающее положение границы раздела жидкой и твёрдых фаз и уравнение Навье–Стокса для течения расплава, учитывающее также (в виде граничного условия) зависимость поверхностного натяжения от температуры.

Рассмотрим упрощённую модель. Пусть расплав течёт вдоль плоской поверхности (в направлении оси  $x$ ) с переменным поверхностным натяжением  $\sigma(x)$ , причём слой жидкой фазы имеет толщину  $h(x)$ . Выберем координату  $y$  в направлении, перпендикулярном плоскости, на которой находится жидкость. Слой предполагается таким тонким, что компонента скорости течения, направленная вдоль оси  $y$ , пренебрежимо мала. Соответственно обозначим скорость течения вдоль оси  $x$  как  $v_x \equiv v$ .

Благодаря наличию переменного поверхностного натяжения на поверхности жидкости возникает тангенциальная (сдвиговая) сила

$$\tau_{xy} \equiv \eta \frac{\partial v}{\partial y} = \frac{d\sigma}{dx}, \quad y = h(x) \quad (1)$$

(где  $\eta$  – вязкость жидкости), инициирующая движение в направлении возрастания  $\sigma(x)$ . Равенство (1) должно выполняться на свободной поверхности жидкости. Благодаря вязкости скорость течения расплава в точках твёрдой поверхности обращается в нуль:

$$v_x|_{y=0} = 0. \quad (2)$$

Поскольку расплав можно считать несжимаемой жидкостью, то уравнение непрерывности, связывающее толщину и скорость течения жидкой фазы, можно записать в виде, выражающем закон сохранения массы:

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial(vh)}{\partial x} = 0. \quad (3)$$

Зависимость поверхностного натяжения от координаты появляется благодаря неоднородности нагрева поверхности. При наклонном падении излучения на поверхность зависимость поглощаемой интенсивности  $I$  от угла падения  $\varphi$  определяется двумя факторами: геометрическим изменением профиля интенсивности ( $I \sim I_0 \cos \varphi$ , где угол  $\varphi$  отсчитывается от нормали к поверхности) и изменением, обусловленным угловой зависимостью поглощательной способности вещества  $A(\varphi)$ . Для металлов в случае неполяризованного излучения вплоть до углов  $\varphi \sim 70^\circ$  с хорошей точностью можно использовать следующую аппроксимацию [13]:

$$A(\varphi) = \frac{A_0}{2} \left( \cos \varphi + \frac{1}{\cos \varphi} \right). \quad (4)$$

С учетом этого угловую зависимость поглощаемой интенсивности представим в виде

$$I(\varphi) = \frac{1}{2} A_0 I_0 (1 + \cos^2 \varphi). \quad (5)$$

Для качественного анализа процесса примем, что температура расплава в каждой точке поверхности не меняется со временем и определяется поглощённой дозой излучения. Это допущение оправдано, если рассматриваются, во-первых, малые времена течения и, во-вторых, малые толщины пленки жидкой фазы. Кроме того, будем считать, что имеется начальная неоднородность толщины слоя жидкости, обусловленная, например, капиллярными волнами [9].

Для зависимости поверхностного натяжения от угла падения будем использовать выражение

$$\sigma(\varphi) = \sigma_0 + \sigma_1 \sin^2 \varphi. \quad (6)$$

Величина  $\sigma_0$  – поверхностное натяжение при температуре  $T_0$ , устанавливающейся в случае плоской поверхности. Второе слагаемое в (6) учитывает неоднородность толщины жидкой фазы. При этом для коэффициента  $\sigma_1$  можно использовать оценку

$$\sigma_1 \sim \left| \frac{d\sigma}{dT} \right| \frac{I_0}{\alpha} > 0, \quad (7)$$

где  $\alpha$  – коэффициент теплообмена на границе раздела твёрдой и жидкой фаз.

Соотношение (6) выражает тот факт, что по мере роста наклона поверхности степень нагрева убывает, что, в свою очередь, ведет к росту поверхностного натяжения. Имея в виду, что угол падения излучения связан с профилем слоя расплава  $h(x)$  соотношением

$$\cos^2 \varphi = \frac{1}{1 + (\partial h / \partial x)^2}, \quad (8)$$

получаем

$$\sigma(x) = (\sigma_0 + \sigma_1) - \frac{\sigma_1}{1 + (\partial h / \partial x)^2}. \quad (9)$$

Рассмотрим качественно динамику течения расплава. В квазистационарном приближении зависимость скорости течения тонкого слоя вязкой жидкости от координаты  $y$  можно представить в виде

$$v(x, y) \approx y \frac{\partial v}{\partial y} \Big|_{y=h} = \frac{y}{\eta} \frac{d\sigma}{dx}. \quad (10)$$

Граничные условия (1) и (2) при этом удовлетворяются автоматически. Отсюда следует, что средняя скорость течения дается приближенной формулой [14]

$$v(x) \approx \frac{h}{2\eta} \frac{d\sigma}{dx}. \quad (11)$$

Подставляя (8) и (10) в (3), получаем уравнение, определяющее профиль расплава:

$$\frac{\partial h}{\partial t} - \frac{\sigma_1}{2\eta} \frac{\partial}{\partial x} \left\{ h^2 \frac{\partial}{\partial x} \left[ \frac{1}{1 + (\partial h / \partial x)^2} \right] \right\} = 0. \quad (12)$$

В качестве начального условия для этого уравнения примем

$$h = h_1(x, 0) = a \cos kx. \quad (13)$$

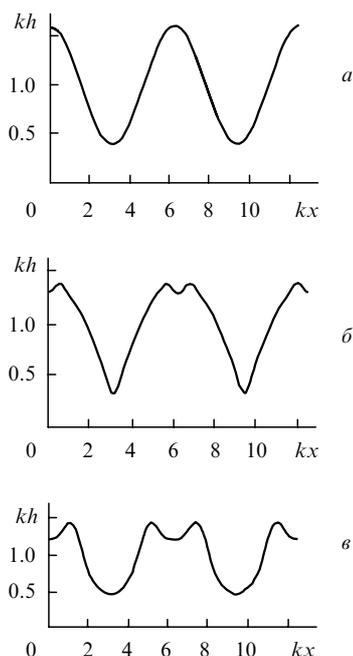


Рис.1. Эволюция начального синусоидального профиля поверхности (а) на стадиях лазерного нагрева (б) и последующего остывания (в).

На рис.1,б представлены результаты численного решения уравнения (12) для случая начального возмущения (13) с амплитудой  $a/h = 0.6$ . Профиль приведен для момента времени  $t = 0.3t_0$ , где  $t_0 = 2\eta\lambda^2/(\sigma_1 h_0)$ ,  $h_0$  – средняя толщина расплава,  $\lambda = 2\pi/k$  – длина волны расплава. Численный расчёт показывает, что при больших временах профиль практически не меняется. Обращает на себя внимание то, что на вершинах рельефа возникают провалы, связанные с перетеканием расплава в холодные участки поверхности (в обе стороны от максимума температуры). Эти провалы действительно наблюдаются на ранней стадии развития трехмерных периодических структур, например структур титана (рис.2).

Вторая стадия эволюции профиля начинается после окончания действия импульса излучения. В этом случае течение расплава вплоть до затвердевания происходит в заданном температурном поле и, следовательно, при определенной зависимости поверхностного натяжения от координаты. Тогда выражение для рельефа поверхности на стадии остывания будет выглядеть следующим образом:

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{h^2}{2\eta} \frac{\partial \sigma}{\partial x} \right) = 0. \quad (14)$$

Результирующий профиль поверхности, образовавшийся на стадии застывания расплава, показан на рис.1, в. Профиль рассчитан для момента времени  $t = 0.5t_1$  после окончания импульса. Здесь  $t_1 = 2\eta\lambda^2/(\sigma_0 h_0)$ . Численные расчеты, как и выше, показывают, что при этих временах устанавливается практически стационарный профиль. Видно, что впадина на вершине волны становится шире, а провал между соседними волнами увеличивается.

Эволюция профиля поверхности, представленная на рис.1,б и в, иллюстрирует результат действия одного лазерного импульса. При этом профиль на рис.1,в является начальным профилем поверхности для следующего лазерного импульса.

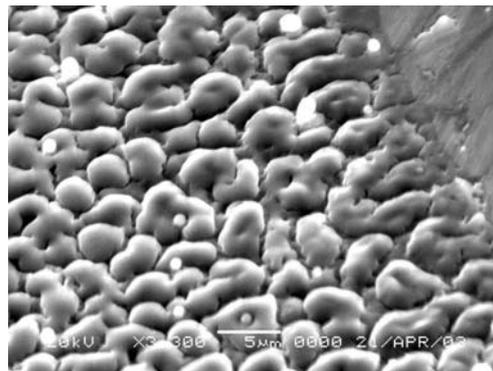


Рис.2. Морфология поверхности титана на ранней стадии развития трехмерных периодических структур. Лазер на парах меди, плотность энергии 0.8 Дж/см<sup>2</sup>. Светлые шары – частицы оксида, расположенные во впадинах на вершинах периодического рельефа.

Важным обстоятельством является увеличение крутизны склона рельефа. Это уменьшает его температуру при нагреве следующим лазерным импульсом вследствие увеличения угла падения излучения на поверхность. При больших отношениях амплитуды рельефа к его периоду (для синусоидального рельефа не менее 0.26) становятся существенными повторные отражения падающего лазерного пучка склонами рельефа во впадины. При этом практически все лазерное излучение переотражается в область вблизи дна рельефа, где и достигается максимальная температура, а в поле излучения формируется каустика, приводящая к значительному повышению температуры в этой области. Как следствие, ускоряется вынос жидкой фазы со дна и амплитуда рельефа возрастает. Эта стадия процесса реализуется уже после серии импульсов и должна описываться усовершенствованной моделью.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ № 04-02-81021Бел 2004-а и 00-15-96636.

1. Sánchez F., Morenza J.L., Aguiar R., Delgado J.C., Varela M. *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 620 (1996).
2. Sánchez F., Morenza J.L., Aguiar R., Delgado J.C., Varela M. *Appl. Phys. A*, **66**, 83 (1998).
3. Dolgaev S.I., Lavrishev S.V., Lyalin A.A., Simakin A.V., Voronov V.V., Shafeyev G.A. *Phys. Vibrations*, **3**, 231 (1999).
4. Her T.H., Finlay R.F., Wu C., Deliwala S., Mazur E. *Appl. Phys. Lett.*, **73**, 1673 (1998).
5. Her T.H., Finlay R.F., Wu C., Deliwala S., Mazur E. *Appl. Phys. A*, **70**, 383 (2000).
6. Pedraza A.J., Fowlkes J.D., Lowndes D.H. *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 2322 (1999).
7. Pedraza A.J., Fowlkes J.D., Lowndes D.H. *Appl. Phys. A*, **69**, S731 (1999).
8. Dolgaev S.I., Lavrishev S.V., Lyalin A.A., Simakin A.V., Voronov V.V., Shafeyev G.A. *Appl. Phys. A*, **73**, 177 (2001).
9. Воронов В.В., Долгаев С.И., Лавришев С.В., Лялин А.А., Симакин А.В., Шафеев Г.А. *Квантовая электроника*, **30** (8), 710 (2000).
10. Левченко Е.Б., Черняков А.Л. *ЖЭТФ*, **81**, № 1 (7), 202 (1981).
11. Бугаев А.Б., Лукошкин В.А., Урпин В.А., Яковлев Д.Г. *ЖТФ*, **58** (5), 908 (1988).
12. Андреев В.К., Захватаев В.Е., Рябицкий Е.А. *Термокапиллярная неустойчивость* (Новосибирск: Наука, 2000).
13. Карлов Н.В., Кириченко Н.А., Лукьянчук Б.С. *Лазерная термодинамика* (М.: Центрком, 1995).
14. Левич В.Г. *Физико-химическая гидродинамика* (М.: Изд-во АН СССР, 1952).