

03;07;12

Лазерно-индуцированные неустойчивости непрерывного следа воздействия на поверхность

© М.Н. Либенсон, С.М. Сарнаков, В.А. Чуйко, Г.Д. Шандыбина

Санкт-Петербургский государственный институт точной механики и оптики (Технический университет),
197101 Санкт-Петербург, Россия

(Поступило в Редакцию 27 ноября 1998 г. В окончательной редакции 6 октября 1999 г.)

Представлены результаты, подтверждающие важную роль лазерно-индуцированного парофазного окисления в возникновении неустойчивости следа воздействия и самоорганизующихся структур.

Введение

Облучение поверхностей интенсивным сканируемым остро сфокусированным импульсно-периодическим лазерным излучением может сопровождаться эффектами квазипериодического изменения следа воздействия [1]. В принципе они наблюдаются, когда в процессе лазерного облучения изменяются оптические свойства среды в том месте, куда приближается сканируемое световое пятно. Показательным примером может служить ситуация, когда под действием излучения происходит генерация резонансных электромагнитных возбуждений (ПЭВ или волноводных мод), распространяющихся вдоль направления сканирования [2,3]. В результате поглощения этих волн поверхность сильнее нагревается впереди светового пятна и по мере его перемещения эффективность воздействия возрастает (растут ширина и глубина следа). Процесс срывается, если наступает столь значительный перегрев поверхности, что происходит разрушение динамического рельефа, на котором поверхностные моды генерировались.

Немаловажную роль в развитии неустойчивостей по пути сканирования лазерного луча могут играть также окислительно-восстановительные реакции, сопровождающие процесс воздействия. При этом, как известно [4], твердофазный механизм окисления, характеризуемый адсорбцией кислорода на поверхности и последующей диффузией ионов через окисный слой, по мере укорочения импульса сменяется на парофазный (или абляционный), когда испаренные частицы вступают в химическую реакцию в воздухе и продукты реакции частично оседают обратно на исходную поверхность.

Ниже представлены результаты экспериментальных исследований и модельного описания абляционных процессов, связанных с парофазным окислением и обратным осаждением продуктов реакции на облученную поверхность и приводящих к неустойчивостям прямолинейного следа лазерного воздействия.

Экспериментальная методика и результаты измерений

Излучение YAG:Nd лазера с длительностью импульса 250 ns фокусировалось на поверхность мишени в пятно диаметром 50 μm и равномерно сканировалось по площади 5 \times 5 mm. Диафрагмирование лазерного пучка позволило выделить для облучения одну моду, а регистрация сигнала фотодиодом, встроенным в глухое зеркало резонатора, установить для нее наиболее стабильный режим генерации. Ослабление выходной мощности излучения осуществлялось поворотом бизеркал Френеля.

В качестве образцов использовались алюминиевые и титановые пленки, нанесенные на кремниевые и стеклянные подложки, и массивные пластины алюминия и титана.

Облученные области, границы облученной зоны, а также прилежащие к ним участки пленок исследовались методами оптической микроскопии, сканирующей электронной микроскопии и оже-спектроскопии.

На рис. 1 представлены электронные спектры облученных титановых и алюминиевых пленок, нанесенных на кремниевые подложки. Плотность потока лазерного излучения соответствует режиму интенсивного испарения металлической пленки. Относительное изменение элементного состава таких пленок непосредственно в зоне лазерного воздействия и вблизи нее можно проследить по $a-d$. Видно, что в зоне облучения титан и алюминий удалены практически полностью вплоть до подложки (рис. 1, a, c). Однако вблизи зоны облучения металлы ведут себя по-разному: наблюдается существенное увеличение содержания кислорода у титана (рис. 1, b) и небольшое изменение (при статистическом усреднении) у алюминия (рис. 1, d). По-видимому, избыточное содержание кислорода в титане связано с образованием его окислов. При этом площадь, на которой было обнаружено избыточное содержание кислорода, превышает размеры облученной зоны.

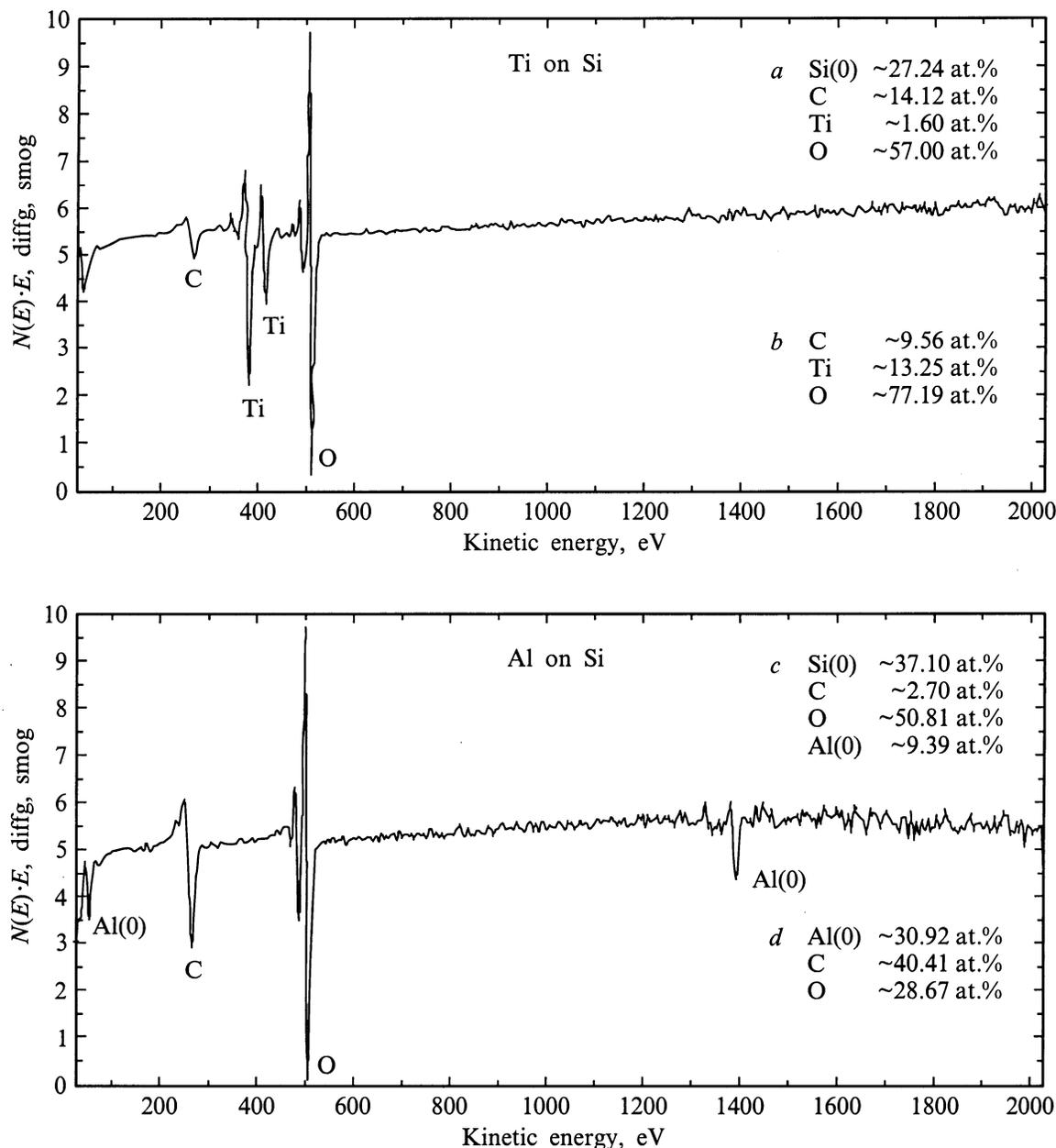


Рис. 1. Электронные спектры облученных титановых (*a, b*) и алюминиевых (*c, d*) пленок на кремниевых подложках, а также относительное содержание их элементного состава: *a, c* — в зоне лазерного воздействия; *b, d* — вблизи зоны лазерного воздействия. Электронные спектры, соответствующие случаям *a* и *c*, на рисунке не показаны.

На рис. 2 представлены распределения элементов вдоль линии электронного сканирования, пересекающей границу облученной лазером и необлученной зон для пленок титана (*a*) и алюминия (*b*) на кремниевых подложках. Распределения получены по данным вторичной электронной эмиссии. Видно, что на титановой пленке эта граница в 2–2.5 раза шире, чем на алюминиевой, и в области границы в первом случае присутствует кремний. По-видимому, лазерное воздействие оказалось столь эффективным, что испаряется не только металлическая пленка, но частично и кремниевая подложка. При этом

обратный поток осажденных частиц для пленки титана существенно больше, чем для пленки алюминия.

С целью оценки массы вещества, оставшейся в результате лазерного воздействия, в опытах использовались титановые пленки, нанесенные на стеклянные подложки. Образцы были облучены в многоимпульсном режиме при различной частоте следования импульсов и фиксированной плотности потока лазерного излучения. По окончании облучения в оптическом микроскопе оценивалась площадь, занятая оставшимися или осевшими обратно на подложку микрочастицами (выраженная в процентах

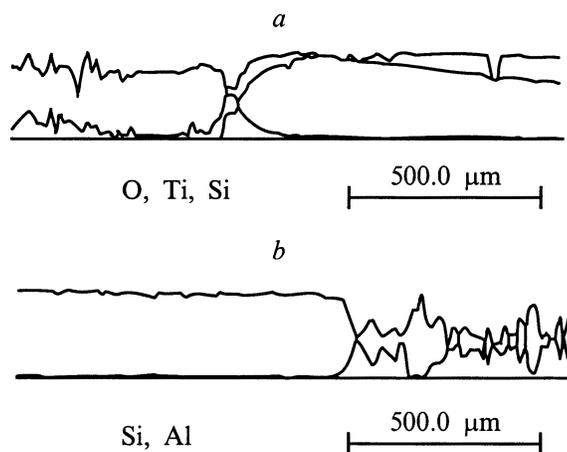


Рис. 2. Электронное сканирование поверхности пленок на границе зоны лазерного воздействия: *a* — Ti-Si, *b* — Al-Si.

к облученной площади), в зависимости от размеров микрочастиц. Гистограммы облученных пленок титана для различных частот следования лазерных импульсов представлены на рис. 3. Видно, что с увеличением частоты следования импульсов количество частиц крупных размеров в облученной зоне растет. Кроме того, увеличивается объем вещества, остающегося на подложке. Этот экспериментальный результат не укладывается в рамки чисто испарительного механизма разрушения и свидетельствует в пользу образования обратного потока испаренных и прореагировавших на воздухе частиц.

Действительно, образование химических соединений в газе (воздухе) способствует уменьшению их молекулярного объема по сравнению с объемом отдельных молекул и соответственно образованию области пониженного давления над поверхностью мишени, что в свою очередь стимулирует увеличение обратного потока частиц [4].

Таким образом, проведенные исследования подтверждают эффективность парофазного окисления при лазерном облучении титана и существенно меньшую эффективность подобного механизма окисления алюминия.

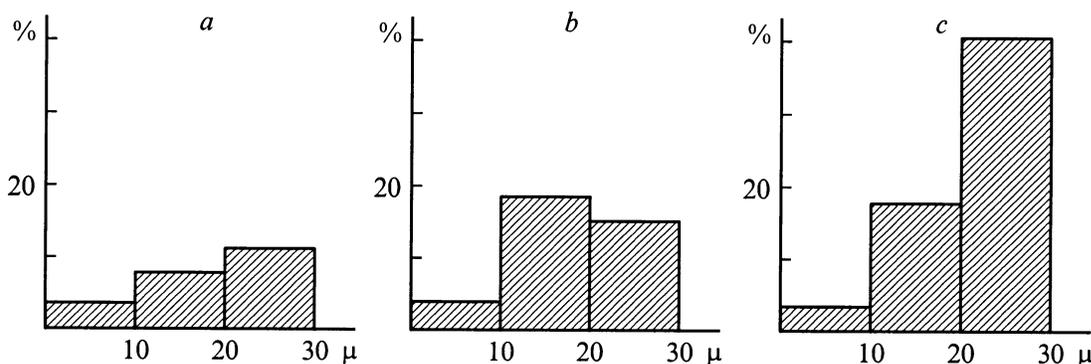


Рис. 3. Гистограммы, иллюстрирующие зависимость числа частиц определенных размеров от их размера, для титановых пленок на стеклянных подложках, облученных лазерными импульсами с частотой 250 (*a*), 500 Hz (*b*), 1 kHz (*c*).

Как уже отмечалось выше, при определенных режимах облучения и сканирования тепловой след лазерного воздействия состоит из квазипериодических структур, имеющих типичный для явлений самоорганизации вид (рис. 4). Пространственный период структур лежит в пределах 250–300 μm для образцов различных типов. На тонких пленках эффект квазипериодического структурирования проявляется в пульсациях ширины следа лазерного воздействия (рис. 4, *a*), на массивных материалах — в изменении глубины разрушения. При этом на титане периодически образуются лунки и испаренный след окаймлен слоем окисла (рис. 4, *b*), а на алюминиевых мишенях тепловой след периодически обрывается и окисный контур отсутствует (рис. 4, *c*).

Обсуждение

Непротиворечивое объяснение приведенных выше результатов может быть дано в рамках качественной модели образования пульсирующего следа лазерного воздействия, предложенной в [1]. Ниже эта модель изложена более последовательно для тонких пленок и массивных материалов. Она основана на том, что при лазерной абляции на поверхности и в приповерхностной плазме инициируется ряд процессов с разветвленными обратными связями разных знаков. Немаловажную роль в их динамике играет парофазное окисление (или в более общем случае газофазная химическая реакция), а также неравномерное (например, гауссовское) распределение плотности светового потока в фокальном пятне.

Действительно, когда плотность светового потока незначительно превышает порог испарения материала, интенсивное испарение происходит только в центральной части фокального пятна. Продукты испарения вступают на воздухе в химические реакции и частично конденсируются на разогретых участках поверхности, окружающих центр пятна. Осажденное вещество обладает повышенной адгезией и благодаря своей неметаллической проводимости повышает поглощательную способность поверхности для последующего импульса. Поскольку при сканировании пятна

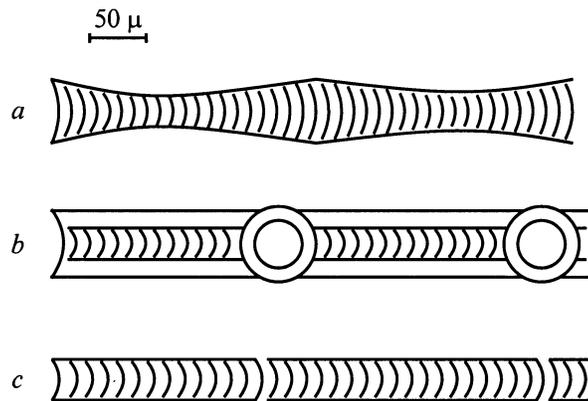


Рис. 4. Характерный вид квазипериодических структурных изменений: *a* — для тонких металлических пленок, *b* — для титановых пластин, *c* — для алюминиевых пластин.

следующий импульс попадает не только на исходную поверхность, но частично и на окисленную с возросшим значением поглощательной способности, то эффективность разрушения растёт и ширина следа воздействия по мере движения пятна увеличивается. Таким образом, создаются условия для неустойчивости формы следа через возникшую пространственно распределённую положительную обратную связь между поглощательной способностью и шириной зоны осаждения. Естественно, что этот режим реализуется только в определенном диапазоне скоростей сканирования и частоты следования импульсов.

В то же время необходимо отметить, что по мере роста размера испаренной области каждое последующее пятно начинает захватывать не только "новые" участки с возросшей поглощательной способностью, но и все большую долю участков, уже подвергнутых воздействию ранее. Если речь идет о тонкопленочных образцах, то с этих участков пленка уже была испарена и они обладают низкой поглощательной способностью, характерной для прозрачной подложки. При этом как бы появляется и постепенно развивается отрицательная обратная связь между указанными выше параметрами.

Результирующий вклад и знак обратных связей, как это можно строго показать, зависит, в частности, от вида распределения светового потока по сечению пятна и режима воздействия во времени (это будет опубликовано нами отдельно). Если сканируется непрерывное лазерное излучение, то в принципе может установиться квазистационарный режим, где влияние положительных и отрицательных пространственных распределённых обратных связей, а также ширина теплового следа воздействия так или иначе стабилизируются. При импульсно-периодическом режиме воздействия картина принципиально иная. Здесь "положение равновесия" автоматически проскакивается из-за прерывности облучения, и в динамике обратная связь всегда имеет определенный знак. Очевидно, что отрицательная обратная связь будет обязательно пре-

обладать над положительной, когда размер испаренной области сравнивается с размером фокального пятна. Тогда по мере последующих "скачков" пятна вдоль линии сканирования ширина испаренного следа будет уменьшаться до тех пор, пока центральная часть пятна не выйдет из испаренной ранее области, т.е. пока не возникнет ситуация типа начальной. В дальнейшем цикл повторяется. Таким образом, по пути сканирования импульсно-периодического излучения может развиваться специфическая неустойчивость, проявляющаяся в образовании на металлических (в более общем случае поглощающих) пленках самоорганизующихся квазипериодических структур.

Заметим, что увеличению поглощательной способности может способствовать остаточное нагревание, присущее в определенных случаях многоимпульсному лазерному воздействию. Однако в режимах облучения, сопровождающихся образованием квазипериодических структур (скважность импульсов более 1000), как показали простые теоретические оценки, остаточное нагревание пренебрежимо мало.

Для массивных материалов картина структурирования следа воздействия носит совершенно иной характер (рис. 4, *b, c*). Однако приведенные выше экспериментальные результаты показали, что лазерно-индуцированные химические процессы здесь также играют немалую роль. Далее изложена похожая на предыдущую модель образования следа воздействия на металлических поверхностях, модифицированная для массивных образцов.

Для хорошо окисляющихся в конденсированной и газовой фазах металлов (например, титана) действие коротких лазерных импульсов сопровождается парофазным окислительным процессом и частичной конденсацией окислов на поверхность [4]. Этот процесс способствует росту поглощательной способности, а тем самым и эффективности теплового воздействия и в конце концов возникновению неустойчивости следа воздействия по описанному выше механизму. Однако для массивной мишени эта неустойчивость проявляется иначе и сводится не столько к изменению ширины следа воздействия, сколько к резкому возрастанию его глубины при воздействии некоторого по счету импульса. Такое проявление неустойчивости соответствует ее типичному смыслу. Гораздо сложнее однозначно интерпретировать последующий срыв процесса разрушения при скачке пятна воздействия к приходу следующего импульса (рис. 4, *b*). Наиболее правдоподобным представляется влияние на процесс осаждения продуктов окисления (необходимый для поддержания положительной обратной связи между эффективностью воздействия и ростом поглощательной способности) процессов в лазерном факеле. Наблюдения показали, что образование относительно глубокой лунки на поверхности титана сопровождается яркой вспышкой. Это наводит на мысль, что "разрушающий" импульс сопровождается вспышкой поглощения в факеле и, как следствие, более дальним разлетом продуктов разрушения. В рассматриваемом здесь контексте это

означает, что плотность осажденных продуктов вокруг пятна воздействия "разрушающего" импульса окажется малой и поглощение для последующего импульса будет близким к начальному. Процесс развития неустойчивости начнется снова, а след воздействия будет состоять из периодически образующихся глубоких лунок на фоне примерно однородного теплового следа.

Для ряда материалов (например, алюминиевых сплавов) парофазные окислительные процессы протекают не столь эффективно. След лазерного воздействия здесь представляет собой узкую полосу, соответствующую размеру "активной" части пятна (рис. 4, с). Постепенное накопление наведенного поглощения в этих условиях может привести к тому, что один из импульсов разрушит поверхностный слой и произведет своеобразную очистку поверхности и уменьшит ее поглощение для последующего импульса, так что тот не произведет видимых повреждений. После скачка светового пятна на новое место процесс начнется сначала. В итоге след теплового воздействия будет иметь вид, как на рис. 4, с, где он периодически прерывается.

Заключение

Таким образом, более последовательное, чем ранее [1], модельное описание позволило дать единое качественное объяснение группе эффектов структурирования следа теплового воздействия сканируемого импульсно-периодического лазерного излучения на массивные и тонкопленочные материалы.

Авторы благодарны В.И. Беклемышеву и С.В. Мурашову за выполненные электронно-микроскопические измерения.

Работа проведена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 97-02-18289).

Список литературы

- [1] *Chujko V., Libenson M., Lysenko A., Shandybina G.* // Proc. SPIE. 1997. Vol. 3093. P. 324–329.
- [2] *Баженов В.В., Бонч-Бруевич А.М., Либенсон М.Н., Макин В.С.* // Письма в ЖТФ. 1986. Т. 12. Вып. 18. С. 1104–1110.
- [3] *Баженов В.В., Макин В.С.* // Письма в ЖТФ. 1990. Т. 16. Вып. 8. С. 20–26.
- [4] *Акимов А.Г., Бонч-Бруевич А.М., Гагарин А.П. и др.* // Письма в ЖТФ. 1987. Т. 13. Вып. 18. С. 1093–1101.