Влияние слоя Ленгмюра на развитие неустойчивости расплавленной металлической поверхности под воздействием плазмы лазерного факела

© А.А. Борматов, В.М. Кожевин, С.А. Гуревич

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия E-mail: antonbormat@mail.ru

Поступило в Редакцию 19 мая 2023 г. В окончательной редакции 15 сентября 2023 г. Принято к публикации 30 октября 2023 г.

Рассмотрена задача о неустойчивости поверхности металла под воздействием плазмы лазерного факела в процессе наносекундной лазерной абляции в вакууме. Для решения задачи построена численная модель слоя Ленгмюра, применимая для проведения расчетов в случае, когда толщина слоя много меньше характерной длины волны возмущения поверхности расплава. Анализ результатов расчетов позволил найти линейные аппроксимации распределений давления ионов и электрического поля на поверхности металла. Использование этих аппроксимаций позволило получить аналитический критерий перехода поверхности в неустойчивое состояние. Показано также, что влияние слоя Ленгмюра приводит к снижению действия капиллярных сил, что может быть использовано для модификации критериев развития неустойчивости в других механизмах.

Ключевые слова: плазма лазерного факела, капиллярная неустойчивость, взаимодействие плазмы и жидкости.

DOI: 10.61011/PJTF.2023.24.56877.182A

Многочисленные теоретические и экспериментальные исследования динамики поверхности [1-7] расплава в процессе наносекундной абляции металла в вакууме показали, что на облучаемой поверхности может развиваться капиллярная неустойчивость, завершающаяся вылетом в плазму лазерного факела капель расплава микронных и субмикронных размеров. Микрокапли расплава, попадая в плазму лазерного факела, заряжаются до величины плавающего потенциала, которая определяется параметрами плазмы. Оценки параметров плазмы для начальной стадии разлета факела после окончания действия лазерного импульса, проведенные с использованием аналитических и численных [8,9] моделей, показывают, что в случае лазерных импульсов с интенсивностью излучения $I \sim 1-3 \, {\rm GW/cm^2}$, длительностью импульса $\tau \sim 20{-}30\,\mathrm{ns}$ и длиной волны излучения $\lambda_I \approx 1\,\mu m$ характерная плотность плазмы находится в диапазоне $n_{pl} \sim 10^{23} - 10^{25} \,\mathrm{m}^{-3}$, а характерная температура электронов плазмы принимает значения $T_e \sim 1-5$ eV. Как показано в работах [5,10], при таких параметрах плазмы заряд микрокапель начинает превышать предельный заряд Рэлея, что может приводить к началу процесса каскадного дробления микрокапель вплоть до нанометровых размеров. На основе этого эффекта был разработан [5,6,11] метод лазерного электродиспергирования (рис. 1, *a*), который позволяет получать наноструктуры, состоящие из аморфных наночастиц различных металлов (Cu, Ni, Au, Ag, W и др.), обладающих узкой дисперсией по размерам (рис. 1, b). Экспериментальные исследования данных наноструктур показали их широкую потенциальную применимость в

связи с их особыми каталитическими, магнитооптическими и структурными свойствами.

В качестве возможных эффектов, вызывающих развитие неустойчивости, которая является источником микрокапель расплава в плазме, рассматривались неоднородный нагрев поверхности мишени [1], модуляции давления плазмы и паров испаренного вещества [2], направленное движение плазмы относительно поверхности расплава [3] и пр. Однако в данных работах при описании плазмы не учитывались образование слоя Ленгмюра (плазменного слоя) вблизи поверхности мишени и его электрическое поле на поверхности расплава. Анализ влияния электрического поля слоя Ленгмюра на динамику жидкометаллической поверхности проводился отдельно как в аналитическом приближении [12], так и с помощью численного подхода [13-15]. В этих работах было показано, что давление электрического поля слоя Ленгмюра может существенно влиять на динамику поверхности. Однако прямое применение разработанных численных моделей в рассматриваемом диапазоне параметров плазмы приводит к возникновению численных неустойчивостей, которые, вероятно, связаны с тем, что основное изменение потенциала электрического поля происходит в тонком пограничном слое вблизи криволинейной границы. Целью данного исследования является разработка подхода, позволяющего провести численные расчеты параметров слоя Ленгмюра вблизи криволинейной поверхности для случая плотной плазмы лазерного факела, а также применение результатов расчета для анализа влияния слоя на развитие неустойчивости.



Рис. 1. *а* — схема лазерного электродиспергирования; *b* — наночастицы Ni, полученные в результате лазерного электродиспергирования [6]; *с* — микрофотографии поверхности мишени после многократного облучения.

В рассматриваемом диапазоне параметров плазмы $(n_{pl} \sim 10^{23} - 10^{25} \, \mathrm{m}^{-3}, \ T_e \sim \ 1 - 5 \, \mathrm{eV})$ эффектом вторичной электронной эмиссии с поверхности можно пренебречь, поэтому поверхность расплава заряжается отрицательно. Потенциал электрического поля и вблизи поверхности расплава можно описать с помощью уравнения Пуассона [16], в правой части которого находится разность плотностей ионов n_i и электронов n_e. В настоящей работе предполагается, что плотность электронов в слое подчиняется распределению Больцмана, т.е. $n_e = n_{pl} \exp(-q_e u/k_B T_e)$, где q_e — заряд электрона, а k_B — постоянная Больцмана. Для решения данной задачи удобно ввести безразмерные координаты $\xi = x/\lambda$, $\eta = y/\lambda$ (λ — длина волны на поверхности расплава), а также безразмерный потенциал электрического поля в слое $\phi = q_e u / (k_B T_e)$. В этом случае уравнение для потенциала имеет вид

$$\alpha^2 \Delta \phi = \rho_i - \exp(-\phi), \tag{1}$$

где $\alpha = l_D/\lambda$ — параметр, l_D — дебаевская длина, $\rho_i = n_i/n_{pl}$ — безразмерная величина плотности ионов в слое. Для нахождения плотности и скорости ионов (ρ_i и **v**_i соответственно) можно использовать систему уравнений для конвективного переноса под действием электрического поля в слое

$$div(\rho_i \mathbf{v}) = \mathbf{0},$$

$$\mathbf{v}(\nabla \cdot \mathbf{v}) = -\nabla\phi.$$
 (2)

Здесь $\mathbf{v} = \mathbf{v}_i / c_i$ — безразмерная скорость ионов в слое, а c_i — ионно-звуковая скорость.

Система (1), (2) решается в области Ω , заданной следующим образом (рис. 2):

$$\Omega = \left\{ \left(\xi, \eta\right) : -\frac{1}{2} \leqslant \xi \leqslant \frac{1}{2}, \qquad \Gamma_m \leqslant \eta \leqslant \Gamma_{sh} \right\}, \quad (3)$$

где Г_m — граница области, описывающая поверхность металла, Г_{sh} — граница слоя Ленгмюра. Граница для описания возмущенной поверхности металла в парамет-



Рис. 2. Схема расчетной области для системы уравнений (1)-(6).

рической форме имеет вид

$$\Gamma_m = \left\{ \left(\xi_m, \eta_m \right) : \xi_m = t, \eta_m = \frac{A}{\lambda} \cos(2\pi t); t \in \left(-\frac{1}{2}; \frac{1}{2} \right) \right\},\tag{4}$$

где A — амплитуда возмущения поверхности, t — параметр. Граница слоя Ленгмюра с плазмой Γ_{sh} в настоящей работе задана таким образом, чтобы нормированная ширина слоя $d = L_{sh}/\lambda$ по нормали к поверхности всюду принимала одинаковое значение. В этом случае верхняя граница слоя в параметрической форме имеет следующий вид:

$$\Gamma_{sh} = \left\{ \left(\xi_{sh}, \eta_{sh} \right) : \xi_{sh} = \xi_m - \frac{(\eta_m)'_t d}{\sqrt{1 + \left((\eta_m)'_t \right)^2}}, \\ \eta_{sh} = \eta_m + \frac{d}{\sqrt{1 + \left((\eta_m)'_t \right)^2}} \right\}.$$
(5)

Такой выбор границы обеспечивает сохранение эффекта экранирования электрического поля в плазме и позволяет упростить систему уравнений путем интегрирования уравнения для скорости ионов в системе (2), однако ограничивает применимость модели только случаями, при которых нормали к поверхности не пересекаются, т.е. $AL_{sh}/\lambda^2 < 1$. Выражение для скорости ионов в приближении движения вдоль силовых линий электрического поля имеет вид $\mathbf{v} = (1 + 2\phi)^{1/2} \nabla \phi / |\nabla \phi|$. Условия для уравнения (1) на границах имеют вид условия Дирихле: $\phi|_{\Gamma_{sh}} = 0$, $\phi|_{\Gamma_m} = \phi_{fl}$ Здесь ϕ_{fl} — плавающий потенциал, который удовлетворяет условию равенства нулю полного тока вдоль поверхности:

$$\int_{\Gamma_m} (\rho_i v - \beta \exp(-\phi)) ds = 0, \quad \beta = \sqrt{\frac{m_i}{m_e}}.$$
 (6)

Граничное условие для плотности ионов $\rho_i|_{\Gamma_{sh}} = 1$, а на границах $\xi = \pm 1/2$ заданы периодические условия. Решение задачи (1)–(6) проводилось в среде Comsol Multiphysics. Толщина слоя Ленгмюра, выбранная для проведения расчетов, должна быть достаточно большой для обеспечения эффекта экранирования электрического поля в плазме ($E_m \gg E_{sh}$, где $E = |\nabla \phi|$), но также не должна нарушать сходимость численных методов. Результаты предварительных расчетов показали, что оптимальным выбором в данном случае является ширина слоя $L_{sh} = (3-4)l_D$.

Кривизна поверхности, как показали расчеты, не влияет на величину плавающего потенциала ϕ_{fl} , заданного формулой (6), поэтому в дальнейших расчетах использовалось значение потенциала, равное плавающему потенциалу на плоской поверхности $\phi_{fl} = \ln \beta$.

Анализ малого возмущения $A/\lambda \ll 1$ проводился в линейном приближении

$$\rho_i \approx \rho_{i,0} + \delta \rho_i \kappa, \quad E \approx E_0 + \delta E \kappa,$$
(7)

где κ — кривизна поверхности. Значения коэффициентов $\rho_{i,0}$, $\delta\rho_i$, E_0 , δE определялись с помощью численного решения краевой задачи (1)–(6). Аппроксимация этих величин довольно точно описывается следующим образом: $E_0 \approx \ln \beta/2.843 \alpha$, $\delta E \approx 0.87 \ln \beta$, $\delta \rho_i \approx 1.75 \alpha v_{i,Me}^2$, где $v_{i,Me} = c_i (1 + 2 \ln \beta)^{1/2}$ — скорость ионов вблизи поверхности расплава.

В силу несжимаемости жидкости постоянная вдоль поверхности часть давления не влияет на ее динамику, поэтому для определения критерия неустойчивости необходимо рассматривать только вариацию давления вдоль поверхности, которая с учетом $\kappa \ll 1$ имеет вид

$$\delta P = \delta P_i + \delta P_{\sigma} - \delta P_E = \frac{m_i n_{pl} v_{i,Me}^2}{2} \delta \rho_i \kappa + \sigma \kappa - \frac{\varepsilon_0 T_e^2}{q_e^2 \lambda^2} E_0 \delta E \kappa.$$
(8)

Здесь δP , δP_i , δP_σ , δP_E — вариации полного давления, давления ионов, капиллярного давления и давления электрического поля на поверхности соответственно, σ — коэффициент поверхностного натяжения расплава. Полная вариация давления имеет вид капиллярного давления с некоторым эффективным значением коэффициента поверхностного натяжения σ_{eff} . Условие развития неустойчивости поверхности в этом случае примет вид $\sigma_{eff} \leq 0$ или

$$\sigma_{eff} = \sigma + \frac{m_i n_{pl} v_{i,Me}^2}{2} \delta \rho_i - \frac{\varepsilon_0 T_e^2}{q_e^2 \lambda^2} E_0 \delta E \leqslant 0.$$
(9)

Результаты расчетов показали, что для развития электрокапиллярной неустойчивости необходима температура электронов плазмы $T_e \approx 20 \,\mathrm{eV}$ для плотности плазмы $n_{pl} = 10^{25} \,\mathrm{m}^{-3}$, однако она быстро растет по мере уменьшения плотности. Причиной этого эффекта является быстрое уменьшение Е0 по мере увеличения толщины слоя. Электрическое поле слоя Ленгмюра также может снижать эффективный коэффициент поверхностного натяжения, оказывая влияние на развитие других видов неустойчивостей. В частности, как было показано в работе [2], для механизма, вызванного модуляцией давления плазмы, оптимальная длина волны для роста неустойчивости пропорциональна коэффициенту поверхностного натяжения. Поэтому уменьшение данного коэффициента приведет к увеличению скорости роста более высоких мод на поверхности расплава.

Благодарности

Авторы выражают благодарность Д.А. Явсину за предоставление фотографий поверхности мишени и наноструктур.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- С.А. Ахманов, В.И. Емельянов, Н.И. Коротеев, В.Н. Семиногов, УФН, **147** (12), 675 (1985).
 DOI: 10.3367/UFNr.0147.198512b.0675 [S.A. Akhmanov, V.I. Emel'yanov, N.I. Koroteev, V.N. Seminogov, Sov. Phys. Usp., **28**, 1084 (1985).
 DOI: 10.1070/PU1985v028n12ABEH003986].
- [2] А.Б. Брайловский, И.А. Дорофеев, А.Б. Езерский, В.А. Ермаков, В.И. Лучин, В.Е. Семенов, ЖТФ, **61** (3), 129 (1991).
- [3] A.B. Brailovsky, S.V. Gaponov, V.I. Luchin, Appl. Phys. A, 61 (1), 81 (1995). DOI: 10.1007/BF01538216
- [4] L.K. Ang, Y.Y. Lau, R.M. Gilgenbach, H.L. Spindler, J.S. Lash, S.D. Kovaleski, J. Appl. Phys., 83 (8), 4466 (1998).
 DOI: 10.1063/1.367208
- [5] V.M. Kozhevin, D.A. Yavsin, V.M. Kouznetsov, V.M. Busov, V.M. Mikushkin, S.Yu. Nikonov, S.A. Gurevich, A. Kolobov, J. Vac. Sci. Technol. B, 18 (3), 1402 (2000).
 DOI: 10.1116/1.591393
- [6] D.S. Ilyushenkov, V.I. Kozub, D.A. Yavsin, V.M. Kozhevin, I.N. Yassievich, T.T. Nguyen, E.H. Bruck, S.A. Gurevich, J. Magn. Magn. Mater., **321** (5), 343 (2009). DOI: 10.1016/j.jmmm.2008.09.024
- [7] A.M. Elsied, P.C. Dieffenbach, P.K. Diwakar, A. Hassanein, Spectrochim. Acta B, 143, 26 (2018).
 DOI: 10.1016/j.sab.2018.02.012
- [8] S. Cai, W. Xiong, F. Wang, Y. Tao, S. Tan, X. Ming, X. Sun, Appl. Surf. Sci., 475, 410 (2019).
 DOI: 10.1016/j.apsusc.2018.12.117
- [9] A. Bogaerts, Z. Chen, R. Gijbels, A. Vertes, Spectrochim. Acta
 B, 58 (11), 1867 (2003). DOI: 10.1016/j.sab.2003.08.004
- [10] А.А. Борматов, В.М. Кожевин, С.А. Гуревич, ЖТФ, 91 (5), 721 (2021). DOI: 10.21883/JTF.2021.05.50682.283-20 [А.А. Bormatov, V.M. Kozhevin, S.A. Gurevich, Tech. Phys., 66, 705 (2021). DOI: 10.1134/S1063784221050078].
- [11] T.N. Rostovshchikova, E.S. Lokteva, E.V. Golubina, K.I. Maslakov, S.A. Gurevich, D.A. Yavsin, V.M. Kozhevin, in Advanced nanomaterials for catalysis and energy advanced nanomaterials for catalysis and energy (Elsevier, 2019), p. 61–97. DOI: /10.1016/B978-0-12-814807-5.00003-6
- [12] В.В. Владимиров, П.М. Головинский, Г.А. Месяц, ЖТФ, 57 (8), 1588 (1987).
- [13] J.T. Holgate, M. Coppins, J. Phys. D: Appl. Phys., 53 (10), 105204 (2020). DOI: 10.1088/1361-6463/ab53fd
- [14] P. Vanraes, A. Bogaerts, J. Appl. Phys., 129 (22), 220901 (2021). DOI: 10.1063/5.0044905
- [15] J.T. Holgate, M. Coppins, J.E. Allen, New J. Phys., 21 (6), 063002 (2019). DOI: 10.1088/1367-2630/ab20fe
- [16] R.N. Franklin, J. Phys. D: Appl. Phys., 36 (22), R309 (2003).
 DOI: 10.1088/0022-3727/36/22/R01