

01; 03; 05; 07

ВОЗБУЖДЕНИЕ КАПИЛЛЯРНЫХ ВОЛН В НЕОДНОРОДНО ПРОГРЕТЫХ ЖИДКИХ ПЛЕНКАХ

В. А. Урпин, Д. Г. Яковлев

Показано, что в неоднородно прогретых жидких пленках может развиваться неустойчивость капиллярных волн, обусловленная термокапиллярными эффектами. Рассчитаны инкременты неустойчивости $\Gamma(\lambda)$ в кремнии, германии и меди при глубинах плавления $d \ll$ нескольких мкм для возмущений с широким интервалом длин волн λ вдоль поверхности. Кривые $\Gamma(\lambda)$ имеют четко выраженный максимум ($\Gamma_{\max} \sim 10^6 \text{ с}^{-1}$) при $\lambda_0 \sim d$, выделяющий интервал длин волн $\lambda \sim \lambda_0$ наиболее неустойчивых мод. Обсуждаются приложения теории к экспериментам по взаимодействию лазерного излучения с веществом.

1. Капиллярные явления играют важную роль в гидродинамике тонких расплавленных пленок. Они особенно важны для пленок толщиной $d \ll$ нескольких мкм, образующихся на поверхности различных веществ в результате воздействия мощного лазерного излучения. В таких пленках может происходить возбуждение капиллярных волн, приводящее к образованию различных поверхностных структур. Например, в работах [1, 2] было показано, что при мощности лазера, достаточной для однородного плавления поверхности, возбуждение капиллярных волн может быть обусловлено неустойчивостью в неоднородном интерференционном поле излучения. При этом на поверхности образца возникают характерные периодические структуры, параметры которых зависят от поляризации и угла падения излучения.

Возможны и другие механизмы возбуждения капиллярных волн. Например, согласно результатам предыдущей работы [3], в пленках, неоднородно прогретых по глубине, капиллярные волны могут возбуждаться из-за термокапиллярных явлений. Качественно механизм этой неустойчивости может быть пояснен следующим образом (см. также рис. 5 работы [3]). Пусть в начальный момент времени в жидкости возникли медленные движения, нормальные к поверхности и синусоидально зависящие от координаты x вдоль поверхности. Эти течения приводят к искажению формы поверхности — появлению подъемов и впадин. Поскольку в интересующих нас условиях (см. ниже) температура падает в глубь расплава, то в области подъемов течения выносятся на поверхность более холодное вещество, а в области впадин уносятся вглубь более горячее. Так возникают малые возмущения температуры T_1 , синусоидально зависящие от x . Поскольку поверхностное натяжение в холодных областях сильнее, чем в горячих, то в поверхностном слое будет действовать тангенциальная сила, направленная от более горячих областей к холодным и вызывающая тангенциальные движения жидкости в этих направлениях. В силу несжимаемости жидкости тангенциальные течения вызовут дополнительные движения в нормальном направлении, ускоряющие поднятие жидкости в холодных областях и опускание в нагретых, что и означает наличие неустойчивости.

В работе [3] данная неустойчивость изучалась в простой модели полубесконечной жидкости. В настоящей работе используется более реалистическая модель расплавленной пленки конечной толщины.

2. Рассмотрим поверхностные волны малой амплитуды в слое жидкости толщиной d . Малые возмущения в волне будем отмечать индексом 1, индексы

у невозмущенных величин не пишем. Считаем, что внутренняя поверхность слоя ($z=0$) соприкасается с твердой подложкой, а наружная поверхность ($z=d$) свободна. Предположим, что распределение невозмущенной температуры является стационарным, не зависит от координат x и y вдоль поверхности, но зависит от глубины z ($T=T(z)$) благодаря нагреву образца с поверхности. Пусть горизонтальный волновой вектор возмущений k направлен вдоль оси x . Тогда возмущенные величины зависят от координаты x и времени t по закону $\exp(\gamma t - ikx)$. Будем изучать колебания, которые происходят гораздо медленнее звуковых. При этом жидкость можно считать несжимаемой

$$\nabla \cdot \mathbf{V}_1 = 0. \quad (1)$$

Линеаризованные уравнения движения и теплового баланса имеют вид

$$\gamma \rho \mathbf{V}_1 = -\nabla p_1 + \rho \nu \Delta \mathbf{V}_1, \quad (2)$$

$$\gamma T_1 = \chi \Delta T_1 - V_{1z} \frac{dT}{dz}, \quad (3)$$

где ρ — плотность, p_1 и T_1 — возмущения давления и температуры, ν и χ — вязкость и температуропроводность. Для простоты считаем, что $dT/dz = \text{const}$. Поскольку мы предположили, что нагрев образца происходит с его поверхности, то $dT/dz > 0$ (тепло уносится теплопроводностью внутрь образца). На свободной поверхности $z=d$ граничные условия к уравнениям (1)–(3) имеют вид (см., например, [4])

$$p_1 + \alpha \frac{\partial^2 \zeta}{\partial x^2} - 2\rho \nu \frac{\partial V_{1z}}{\partial z} = 0, \quad (4)$$

$$\rho \nu \left(\frac{\partial}{\partial z} V_{1z} + \frac{\partial}{\partial x} V_{1x} \right) - \frac{\partial \alpha_1}{\partial x} = 0, \quad (5)$$

$$\partial T_1 / \partial z = 0. \quad (6)$$

Здесь $\alpha = \alpha(T)$ — коэффициент поверхностного натяжения, $\alpha_1 = (d\alpha/dT) T_1$, $\zeta = \zeta(x, t)$ — смещение поверхности жидкости вдоль оси z . Условия (4) и (5) описывают баланс нормальных и тангенциальных натяжений вдоль поверхности. Условие (6) соответствует отсутствию возмущений теплового потока через свободную поверхность. На внутренней поверхности жидкого слоя ($z=0$) должны выполняться условия

$$V_{1z} = 0, \quad \frac{\partial}{\partial z} V_{1z} = 0. \quad (7)$$

Кроме того, для простоты предположим, что твердая подложка имеет высокую теплопроводность, вследствие чего возмущения температуры при $z=0$ несущественны

$$T_1 = 0. \quad (8)$$

Исключая p_1 и V_{1z} из (1) и (2), получим уравнение, содержащее лишь z -компоненту скорости

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - k^2 \right) \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - k_1^2 \right) V_{1x} = 0, \quad k_1^2 = k^2 + \frac{\gamma}{\nu}. \quad (9)$$

Решение этого уравнения, удовлетворяющее граничным условиям (7), имеет вид

$$V_{1x} = \exp(\gamma t - ikx) \left[A \left(\text{sh } k_1 z - \frac{k_1}{k} \text{sh } kz \right) + B (\text{ch } kz - \text{ch } k_1 z) \right], \quad (10)$$

где A и B — произвольные постоянные.

Используя (10), из уравнения (3) нетрудно получить выражение для возмущений температуры, удовлетворяющее условию (8)

$$T_1 = \exp(\gamma t - ikx) \left\{ C \operatorname{sh} k_2 z + \frac{1}{\gamma} \frac{dT}{dz} \left[B \left(\frac{\chi}{\chi - \nu} \operatorname{ch} k_2 z - \operatorname{ch} kz - \frac{\nu}{\chi - \nu} \operatorname{ch} k_1 z \right) + A \left(\frac{k_1}{k} \operatorname{sh} kz + \frac{\nu}{\chi - \nu} \operatorname{sh} k_1 z \right) \right] \right\}, \quad k_2^2 = k^2 + \frac{\gamma}{\chi}, \quad (11)$$

где C — еще одна постоянная.

Введем следующие характерные частоты:

$$\omega_c = \left(\frac{\alpha}{\rho} k^3 \right)^{1/2}, \quad \omega_\nu = 2\nu k^2, \quad \omega_\alpha = \frac{\xi \alpha}{2\rho \nu H}. \quad (12)$$

Здесь ω_c — частота обычных капиллярных волн в однородной жидкости, ω_ν — обратное время изменения возмущений вследствие вязкости, ω_α — характерное обратное время термокапиллярных процессов в неоднородно прогретой жидкости. Величины ξ и H определяются производными $\xi = d \ln \alpha(T) / d \ln T$, $H = dz / d \ln T(z)$ при $z = d$.

Подставляя теперь выражения (10) и (11) в граничные условия (4)–(6), учитывая, что

$$\varsigma = \frac{V_{1z}}{\gamma}, \quad p_1 = \frac{\rho \nu}{k^2} \left(\frac{\partial^3}{\partial z^3} V_{1z} - k^2 \frac{\partial}{\partial z} V_{1z} \right),$$

и приравняв нулю определитель получившейся системы уравнений, приходим к следующему дисперсионному уравнению для поверхностных колебаний:

$$X^2 \{ (X+1)^2 A_1 + a^2 A_2 - A_3 + 2A_4 (X+1) \} = b \left\{ a^2 \left[\frac{A_2}{1-\varepsilon} - \alpha_1 \left(A_1 + \frac{\varepsilon}{1-\varepsilon} A_3 \right) - \frac{A_4}{1-\varepsilon} (\alpha_1 + \alpha_3 - \alpha_4 - 2\varepsilon \alpha_1) \right] + X^2 \left[\frac{\varepsilon}{1-\varepsilon} (A_1 - A_5) + A_4 \left(\frac{\alpha_2}{1-\varepsilon} - 1 \right) + X \left[A_3 + \frac{\varepsilon A_1}{1-\varepsilon} - \frac{A_5}{1-\varepsilon} + \frac{A_4}{1-\varepsilon} (\alpha_2 - \alpha_5 - 1 + 2\varepsilon) \right] \right] \right\}. \quad (13)$$

Здесь

$$X = \frac{\gamma}{\omega_\nu}, \quad a \simeq \frac{\omega_c}{\omega_\nu}, \quad b = \frac{\omega_\alpha}{\omega_\nu}, \quad \varepsilon = \frac{\nu}{\chi},$$

$$A_1 = 1 - \frac{k_1}{k} \operatorname{cth}(kd) \operatorname{cth}(k_1 d), \quad A_2 = \operatorname{cth}(kd) - \frac{k_1}{k} \operatorname{cth}(k_1 d),$$

$$A_3 = \frac{k_1}{k} \left[\operatorname{cth}(kd) \operatorname{cth}(k_1 d) \sim \frac{k_1}{k} \right], \quad A_4 \simeq \frac{k_1}{k} \operatorname{sh}^{-1}(kd) \operatorname{sh}^{-1}(k_1 d),$$

$$A_5 = \frac{k_1}{k_2} \operatorname{th}(k_2 d) \left[\operatorname{cth}(k_1 d) - \frac{k_1}{k} \operatorname{cth}(kd) \right],$$

$$\alpha_1 = \frac{k_1}{k_2} \operatorname{th}(k_2 d), \quad \alpha_2 = \operatorname{ch}(kd) \operatorname{ch}(k_2 d), \quad \alpha_3 = \frac{k}{k_1} \operatorname{sh}(k_1 d) \operatorname{ch}^{-1}(k_2 d),$$

$$\alpha_4 = \operatorname{sh}(kd) / \operatorname{ch}(k_2 d), \quad \alpha_5 = \operatorname{ch}(k_1 d) / \operatorname{ch}(k_2 d). \quad (14)$$

При большой толщине жидкого слоя ($d \rightarrow \infty$) уравнение (13) переходит в дисперсионное уравнение для полубесконечной среды [3].

3. Уравнение (13) решалось численно для кремния, германия и меди. При этом находились собственные частоты $\Omega = \operatorname{Im} \gamma$ и инкременты $\Gamma = \operatorname{Re} \gamma$ колебаний для различных толщин жидкого слоя d и масштабов изменения температуры H в широком интервале длин волн $\lambda = 2\pi/k$. По тем же причинам, что и в [3], параметр ξ полагался равным $\xi = -4$. Для простоты расчетов мы не учитывали, что вязкость меди сильно зависит от температуры, и принимали $\nu = 4 \cdot 10^{-6}$ см²/с. Для определенности отношение $H/d = T(d) / [T(d) - T(0)]$ мы полагали равным $H/d = 2$, что достигается при $T(d) = 2T(0)$.

Результаты расчетов представлены на рис. 1–4. Прежде всего отметим, что во всех рассмотренных случаях $\Gamma \ll \Omega \approx \omega_c$, т. е. сравнительно медленное увеличение амплитуды волны происходит на фоне более быстрых гармонических колебаний, частота которых очень близка к частоте обычных капиллярных волн.

Рис. 1 дает зависимость Ω (штрихпунктирные линии) и Γ (сплошные линии) от длины волны в кремнии. Видно, что кривая Γ (λ) имеет явно выраженный максимум $\Gamma_{\max} = \Gamma(\lambda_0)$. При $d=0.6$ мкм этому максимуму отвечает $\lambda_0 \approx 3$ мкм (кривые 1), а при $d=1$ мкм $\lambda_0 \approx 4$ мкм (кривые 2). При $d=0.6$ мкм условие $\Gamma(\lambda)/\Gamma_{\max} > 0.5$ выполняется в интервале длин волн $2 < \lambda < 4$ мкм, а при $d=1$ мкм — в интервале $3 < \lambda < 7$ мкм. Для достаточно малых λ ($\lambda \leq 2$ мкм) волны затухают ($\Gamma < 0$) из-за сильной вязкой диссипации (см. ниже). Длинно-волновые возмущения с $\lambda \gg d$ также должны затухать, но из-за малой толщины жидкой пленки.

При $\lambda < \lambda_0$ волновые движения локализованы в слое толщиной $z < d$ вблизи свободной поверхности и нечувствительны к наличию внутренней границы $z=0$. Поэтому при $\lambda < \lambda_0$ найденные инкременты $\Gamma(\lambda)$ мало отличаются

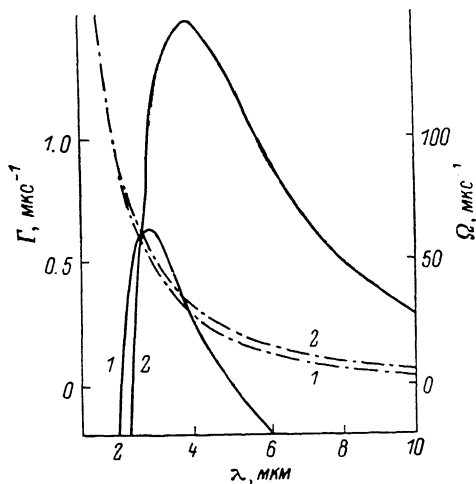


Рис. 1.

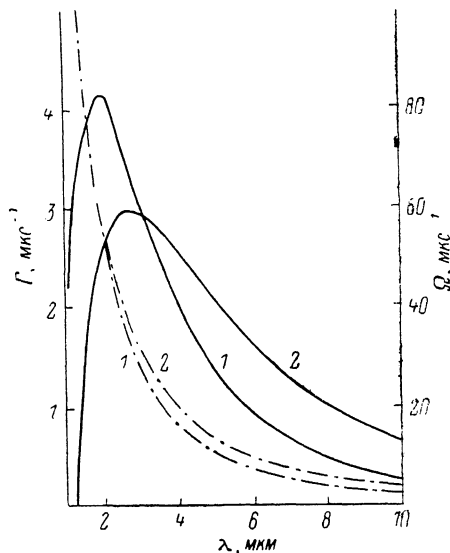


Рис. 2.

от инкрементов, вычисленных [3] для полубесконечной среды (ср. рис. 1 данной работы с рис. 3 работы [3]). Однако при $\lambda \geq \lambda_0$ толщина пленки сказывается очень сильно: если в полубесконечной среде кривая $\Gamma(\lambda)$ ведет себя фактически монотонно, то в пленке кривая $\Gamma(\lambda)$ имеет максимум и спадает при $\lambda > \lambda_0$ именно из-за наличия внутренней границы. Тем самым настоящие расчеты в отличие от [3] позволяют выделить интервал длин волн $\lambda \sim \lambda_0$ наиболее нестабильных возмущений.

Зависимости $\Gamma(\lambda)$ (сплошные линии) и $\Omega(\lambda)$ (штрихпунктирные линии) в германии качественно такие же, как и в кремнии (рис. 2). Однако в германии длины волн наиболее неустойчивых мод несколько ниже: $\lambda_0 \approx 2$ мкм при $d=0.6$ мкм (кривые 1) и $\lambda_0 \approx 3$ мкм при $d=1$ мкм (кривые 2). Неравенство $\Gamma(\lambda)/\Gamma_{\max} > 0.5$ выполняется для возмущений с $1 < \lambda < 4$ мкм, если $d=0.6$ мкм, и для возмущений с $2 < \lambda < 6$ мкм, если $d=1$ мкм. Некоторое уменьшение λ_0 в германии (при той же толщине d) связано с меньшей вязкостью этого материала. По той же причине инкременты капиллярных волн в германии несколько выше, чем в кремнии.

Рис. 3 дает зависимости $\Gamma(\lambda)$ (сплошные линии) и $\Omega(\lambda)$ (штрихпунктирные) для более толстых расплавленных пленок германия ($d=4$ и 6 мкм). Различия кривых $\Omega(\lambda)$ для $d=4$ и 6 мкм (кривые 1, 2 соответственно) совершенно незначительны. Характерные масштабы возбуждаемых волн значительно больше, чем в случае малых d . Так, при $d=4$ мкм имеем $\lambda_0 \approx 9$ мкм, а при $d=6$ мкм $\lambda_0 \approx 13$ мкм. Максимумы кривых $\Gamma(\lambda)$ выражены гораздо слабее, чем при малых d . Поэтому в более толстых пленках могут возбуждаться волны с более широким спектром значений λ .

На рис. 4 показаны зависимости зависимости максимального инкремента Γ_{\max} , который достигается при данной толщине слоя d , от этой толщины для кремния, германия и меди. При достаточно больших d инкремент Γ_{\max} убывает с ростом d для всех веществ. Это объясняется уменьшением градиента температуры в слое и, следовательно, ослаблением термокапиллярных эффектов, приводящих к неустойчивости. При малых толщинах Γ_{\max} убывает с уменьшением d из-за вязкой диссипации. Дело в том, что с уменьшением d скорость термокапилляр-

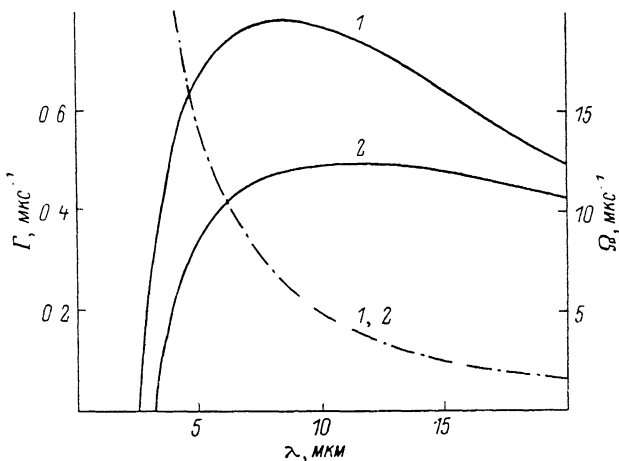


Рис. 3.

ных эффектов, определяемая величиной $\omega_\alpha \propto H^{-1} \propto d^{-1}$, растет медленнее, чем скорость вязкой диссипации (которая при $kd \gg 1$ пропорциональна d^{-2}). Поэтому, если d становится меньше определенной критической толщины d_c , волны всех масштабов оказываются затухающими. Для кремния $d_c \approx 0.5$ мкм, а для германия $d_c \approx 0.2$ мкм. Величина d_c для меди значительно меньше из-за сравнительно малой вязкости меди.

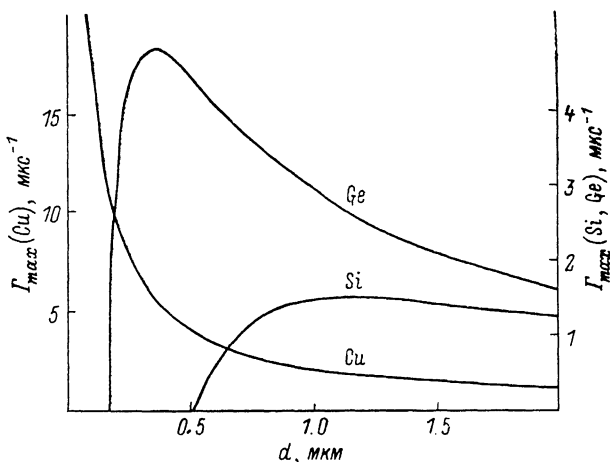


Рис. 4.

Наконец, отметим, что для рассмотренных значений параметров длины волн наиболее нестабильных мод аппроксимируются простыми соотношениями: $\lambda_0(\text{Si}) \approx 2.5d + 1.25$ мкм, $\lambda_0(\text{Ge}) \approx 2d + 0.8$ мкм, $\lambda_0(\text{Cu}) \approx 1.2d + 0.1$ мкм.

Подчеркнем, что приведенные результаты получены при определенном перепаде температуры между внешней и внутренней поверхностями расплава, $T(d) = 2T(0)$. При уменьшении перепада температуры инкремент неустойчивости уменьшается, и при достаточно малом перепаде неустойчивость исчезает.

4. Необходимым условием развития рассмотренной неустойчивости является убывание температуры в глубь расплавленного слоя (см. также [3]). Это

Условие может выполняться во многих экспериментах по взаимодействию лазерного излучения с веществом, так как энергия лазерного импульса, выделяющаяся в тонком поверхностном слое, в основном отводится внутрь образцов благодаря теплопроводности. Кроме того, в расчетах использовалось условие стационарности невозмущенного профиля температуры. Это условие выполняется в случае достаточно длительного лазерного импульса $\tau_n \gg \tau_\chi$, где τ_χ — характерное время остывания пленки за счет теплопроводности. Оно может выполняться и для коротких импульсов, если неустойчивость развивается быстрее, чем происходит остывание $\Gamma^{-1} \ll \tau_\chi$. Условие стационарности использовалось нами лишь для простоты расчета. Нам представляется, что неустойчивость капиллярных волн будет развиваться и в нестационарном случае, например в процессе остывания жидкой пленки после воздействия лазерного импульса, если $\Gamma^{-1} \sim \tau_\chi$. Однако расчет развития неустойчивости в динамике остывания крайне сложен. Наконец, при расчете предполагалось, что градиент невозмущенной температуры $dT/dz = \text{const}$. Это предположение также использовано лишь для простоты вычислений. В частности, наиболее быстрорастущие капиллярные моды локализованы по всей глубине жидкой пленки. Следовательно, можно ожидать, что по крайней мере для этих мод важен не столько конкретный вид dT/dz , сколько наличие достаточно сильного перепада температуры между подложкой и поверхностью. Тем самым представляется, что термокапиллярные эффекты могут приводить к возбуждению капиллярных волн в расплавленных пленках в достаточно широком диапазоне условий. В конечном счете эти эффекты могут приводить и к образованию структур рельефа поверхности после затвердевания образцов. Основной особенностью таких структур будет их слабая зависимость от поляризации и угла падения излучения, так как механизм их возбуждения по существу определяется лишь свойствами материала и мощностью импульса.

Подобные структуры могут возникать при воздействии на материалы достаточно длительных импульсов ($\tau_n > \tau_\chi$), мощность которых недостаточна для того, чтобы проявлялись интерференционные эффекты [1, 2] (но достаточна для однородного плавления поверхности). Например, при плавлении кремния или германия на глубину $d \sim 1$ мкм характерное время развития неустойчивости $\tau = \Gamma^{-1} \sim 0.3\text{--}1$ мкс. Поэтому если $\tau_n > \tau$, то в расплавленной пленке могут возникать условия, благоприятные для развития неустойчивости. Наиболее эффективно в таких пленках будут возбуждаться капиллярные волны с $\lambda \sim 3\text{--}4$ мкм.

Рассмотренный механизм может быть важен и при воздействии на образцы ультракороткими импульсами ($\tau_n < 1$ нс), если $\tau \ll \tau_\chi$. В ряде экспериментов с ультракороткими импульсами (см., например, [5⁻⁹]) на поверхности кремниевых и германиевых образцов наблюдались ячеистые структуры, параметры которых слабо зависели от поляризации и угла падения излучения. Например, в экспериментах [5⁻⁷] лазерный импульс ($\lambda_{\text{лаз}} = 1.06$ мкм, $\tau_n = 35$ пс) фокусировался на поверхность кремниевой пластины в пятно с диаметром ~ 150 мкм. Плотность энергии в пятне в 1.5—2 раза превышала величину, необходимую для плавления. Толщина расплавленной пленки составляла $\sim 1\text{--}2$ мкм. На поверхности пятна авторы наблюдали ячеистые структуры с характерным масштабом ~ 5 мкм. Согласно оценкам авторов [5⁻⁷], затвердевание расплава происходит за время $\tau_\chi \sim 10^{-7}$ с (отметим, что эта величина известна недостаточно точно и ее определение в экспериментах связано с рядом трудностей). Время развития неустойчивости Γ^{-1} для пленок с $d \sim 1\text{--}2$ мкм, по-видимому, $\sim \tau_\chi$. Поэтому есть основания считать, что наблюдаемые структуры можно объяснить генерацией капиллярных волн предложенным механизмом. При $d \sim 1\text{--}2$ мкм этот механизм дает характерный масштаб наиболее неустойчивых возмущений $\lambda_0 \sim 4\text{--}6$ мкм, что хорошо согласуется с наблюдениями.

В соответствии с указанным механизмом образование ячеистых структур возможно при облучении различных материалов. Параметры структур могут быть весьма различны (например, в меди возможны структуры очень малых масштабов), однако во всех случаях они должны слабо зависеть от поляризации и угла падения лазерного излучения и определяться лишь свойствами материала и мощностью импульса.

Авторы благодарны А. А. Бугаеву и В. А. Лукошкину за обсуждение результатов различных экспериментов, а также И. А. Меркулову за полезные критические замечания.

Литература

- [1] *Азманов С. А., Емельянов В. И., Коротеев Н. И., Семиногов В. Н.* // УФН. 1985. Т. 147. № 4. С. 675—745.
- [2] *Емельянов В. И., Земсков Е. М., Семиногов В. И.* // Квантовая электрон. 1984. Т. 11. № 11. С. 2283—2287.
- [3] *Бугаев А. А., Лукошкин В. А., Урпин В. А., Яковлев Д. Г.* // ЖТФ. 1988. Т. 56. Вып. 5. С. 908—914.
- [4] *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.* Гидродинамика. М.: Наука, 1986.
- [5] *Бугаев А. А., Захарченя Б. П., Иванов М. Г., Меркулов И. А.* // Письма в ЖТФ. 1986. Т. 12. Вып. 4. С. 220—223.
- [6] *Бугаев А. А., Захарченя Б. П., Иванов М. Г., Меркулов И. А.* // ФТТ. 1986. Т. 28. Вып. 5. С. 1484—1487.
- [7] *Бугаев А. А., Захарченя Б. П., Лукошкин В. А.* // Письма в ЖТФ. 1986. Т. 12. Вып. 12. С. 710—713.
- [8] *Гусаков Г. М., Комарницкий А. А.* // Письма в ЖТФ. 1987. Т. 13. Вып. 3. С. 170—174.
- [9] *Баскин Б. А., Поляков А. А., Трухин В. Н., Ярошецкий И. Д.* // Письма в ЖТФ. 1985. Т. 11. Вып. 20. С. 1251—1257.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе АН СССР
Ленинград

Поступило в Редакцию
12 января 1988 г.
