

# Дифракция на микропузырьке и морфология поверхности кремния после облучения через глицерин парой фемтосекундных лазерных импульсов

Н. А. Иногамов<sup>+,\*×1)</sup>, С. А. Ромашевский<sup>\*</sup>, А. И. Игнатов<sup>+°</sup>, В. В. Жаховский<sup>+,\*</sup>, В. А. Хохлов<sup>×</sup>,  
Е. М. Еганова<sup>∇</sup>, Е. А. Першина<sup>∇</sup>, С. И. Ашитков<sup>\*</sup>

<sup>+</sup>Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н. Л. Духова, 127055 Москва, Россия

<sup>\*</sup>Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

<sup>×</sup>Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черногловка, Россия

<sup>°</sup>Национальный исследовательский Московский государственный строительный университет (НИУ МГСУ),  
129337 Москва, Россия

<sup>∇</sup>Институт нанотехнологий микроэлектроники РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 ноября 2020 г.

После переработки 3 декабря 2020 г.

Принята к публикации 3 декабря 2020 г.

Воздействие двух последовательных лазерных импульсов на кремний, помещенный в глицерин, исследовано экспериментально и численно с помощью программ электромагнитного, гидродинамического и атомистического моделирования. Показано, что после первого импульса на поверхности образуется микропузырек в жидкости, на котором затем происходит дифракция второго импульса, ширина светового пучка которого сравнима с диаметром микропузырька. Мы рассчитали дифракционную картину и распределение интенсивности света на поверхности кремния, и оказалось, что максимальная интенсивность в дифракционных пиках может заметно превышать интенсивность на оси падающего гауссова пучка. В результате усиления интенсивности, сконцентрированной в одном ярком узком кольце вокруг микропузырька, на кремнии образуется характерная канавка, окруженная валиками. Мы продемонстрировали в молекулярно-динамическом расчете, что интенсивный нагрев в дифракционном пике вызывает плавление и вытеснение расплава от центра прогрева. Это приводит к формированию канавок с валиками, имеющими профиль, подобный измеренному в эксперименте.

DOI: 10.31857/S1234567821020026

**1. Введение.** Фундаментальные проблемы физики взаимодействия излучения с веществом имеют непосредственное отношение к современным технологиям электроники, оптоэлектроники, фотоники, плазмоники и т.п. (фотоны, как инструмент обработки, созидания на уровне нанометров). Разумеется, решение фундаментальной проблемы далее повышает уровень технологического развития. По тематике наша работа (оптическая нанолитография в жидкости) относится к таким разделам, как лазерная абляция в жидкости [1–4], с одной стороны, и наноструктурирование поверхности при ее острогофокусированном облучении [5–11], с другой стороны. Результаты работы представлены на рис. 1 и 2. Методика позволяет вести обработку поверхности на масштабах, которые существенно меньше длины вол-

ны в вакууме. Детали расчетов, приведших к этим рисункам, даны после вводного раздела.

В работе рассматриваются особенности взаимодействия двух фемтосекундных лазерных импульсов (ФЛИ) с поверхностью материала (кремния), погруженного в вязкую жидкость (глицерин). В отличие от облучения в газовой среде или вакууме, в жидкости при воздействии одного импульса, помимо нагрева самого приповерхностного слоя материала, происходит нагрев тонкого прилегающего слоя жидкости, что в конечном счете ведет к образованию пузырька. Данное явление хорошо известно исследователям лазерной абляции в жидкости, которую (абляцию) активно используют для выработки химически чистых наночастиц [1–4]. С одной стороны, горячий слой жидкости (диффузно перемешанный с веществом мишени) является своего рода “реактором”, в котором происходит формирование наноча-

<sup>1)</sup>e-mail: nailinogamov@gmail.com

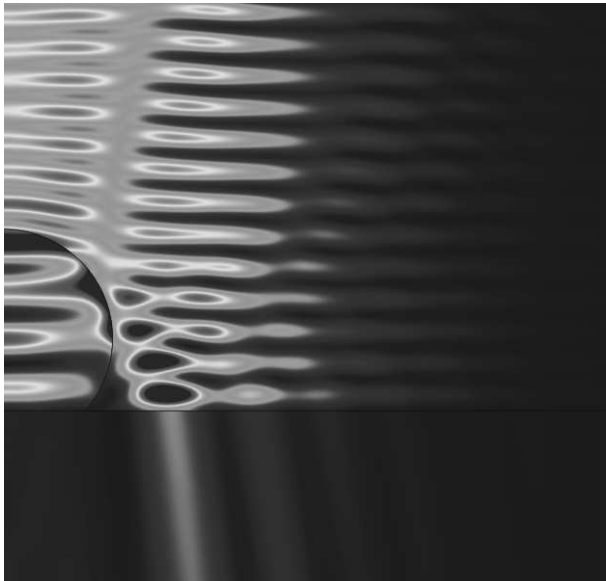


Рис. 1. (Цветной онлайн) Распределение интенсивности  $I(x, z)$  электрического поля (в относительных единицах) при дифракции линейно поляризованного Гауссова пучка на пузырьке радиуса 1.2 мкм в глицерине. Пузырек в форме сферического сегмента лежит на плоской поверхности кремния, причем расстояние от центра сферы до поверхности 0.8 мкм. Гауссов пучок падает сверху (из глицерина), радиус пучка по уровню интенсивности  $1/e$  составляет 3 мкм. Длина волны света в глицерине 704 нм. Поле  $I(x, z)$  дается в плоскости, проходящей через центр сферы по нормали к поверхности кремния и параллельно поляризации пучка

стиц [12, 13]; пузырь образуется из горячего слоя. С другой стороны, данный пузырь является негативным фактором (по отношению к наработке наночастиц), поскольку экранирует поверхность материала от воздействия последующих импульсов.

В данной работе, напротив, анализируется явление пространственной модуляции распределения интенсивности 2-го ФЛИ на препятствии – микронном пузырьке (см. рис. 1 и 2). Таким образом, у нас пузырек – это положительный фактор. Пузырек создается в жидкости вблизи облучаемой поверхности материала 1-м импульсом [14, 15]. В результате модуляции на поверхности материала формируются круговые структуры. Они являются проекцией (отпечатком в мишени) кольцевой дифракционной картины, возникшей в результате рассеяния 2-го ФЛИ на пузырьке. Только самое яркое кольцо вносит сильные изменения в профиль поверхности, см. рис. 2.

Важно, что облучение проходит через жидкость (иначе не было бы микропузырька). Таким образом, наша задача имеет отношение к абляции в жидкости

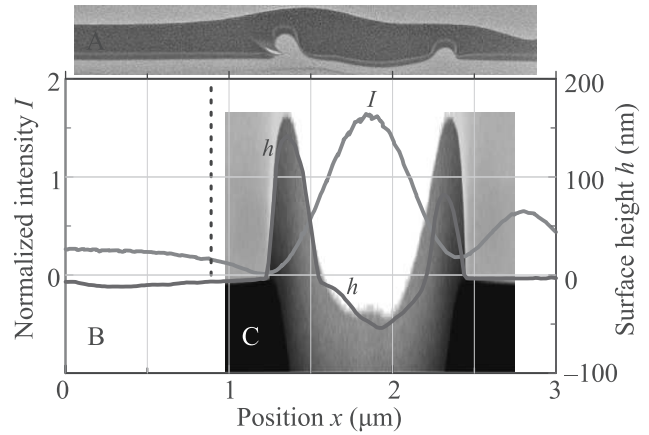


Рис. 2. (Цветной онлайн) А: Просвечивающий электронный микроскоп (ПЭМ, см. раздел 2). Изображение поперечного сечения циркулярной канавки, окруженной асимметричными внутренним и внешним валиками. Структура формируется после воздействия 2-ого ФЛИ, дифрагированного на микропузырьке. В: Распределение нормированной интенсивности  $I(x, z = -20 \text{ нм})$  на глубине 20 нм под поверхностью кремния (красная кривая). Поле  $I(x, z)$  в глицерине и кремнии показано на рис. 1. Максимум красной кривой относится к яркой дифракционной полосе, идущей в кремнии на рис. 1. Мы нормируем  $I$  на значение  $I_G(x = 0, z = -20 \text{ нм})$ , соответствующее гауссову пучку  $I_G$  в случае без пузырька. Профиль поверхности, показанной на рис. 2А (ПЭМ), представлен здесь синей кривой (это измерение с помощью атомного силового микроскопа – АСМ). Максимальная глубина циркулярной канавки составляет 50 нм, высота валиков 80–140 нм. С: МД вставка показывает распределение плотности в серых полутонах в плоскости, пересекающей канавку поперек (кривизна канавки не учитывается) – поэтому валики симметричны в МД расчете (раздел 5). Штриховая вертикаль указывает крайнюю правую точку контакта пузырька (усеченной сферы) с кремнием, см. рис. 1.

с неустранимым формированием пузырька. Но параметры задачи, представленной на рис. 1 и 2, резко отличаются от обычных параметров абляции в жидкости [1–4]. Отличия следующие: во-первых, острая фокусировка, радиус пятна фокусировки гауссовым пучком 3 мкм; обычно пятна от сотни микрометров до миллиметра. Во-вторых, сверхмалый и долгоживущий пузырек – радиус пузырька при самом слабом нашем воздействии на порядок меньше радиуса фокального пятна.

Впервые предположения о существовании пузырька и дифракции на нем были высказаны в экспериментальной работе [14], см. также раздел 2. Данная статья подводит теоретико-доказательную базу под это предположение. Выяснено, почему возникает

пузырек, почему он так мал – раздел 3. Проанализировано, как происходит дифракция падающей электромагнитной (ЭМ) волны гауссова пучка на микропузырьке – раздел 4. Промоделировано, каким образом яркое дифракционное кольцо отпечатывается на поверхности мишени – раздел 5.

## 2. Постановка и результаты эксперимента.

Источником излучения являлся волоконный иттербиевый лазер, генерирующий линейно поляризованные импульсы длительностью  $\tau_L = 270$  фс на длине волны 1028 нм с частотой следования до 5 кГц. Распределение интенсивности излучения в поперечном сечении пучка соответствует гауссову. С помощью микрообъектива ( $\times 20/0.5$ ) лазерный пучок фокусировался по нормали на поверхность образца в пятно диаметром 6 мкм по уровню  $1/e$ . В качестве мишени использовалась полированная пластина кремния  $n$ -типа с кристаллографической ориентацией [111], с шероховатостью  $R_a = 0.1$  нм (среднее арифметическое отклонение профиля). Образец размещался в чашке Петри, заполненной глицерином. Толщина слоя глицерина, через которую проходит лазерное излучение, составляет 0.9 мм. Экспериментальная схема представлена в работе [14].

Поверхность кремния, погруженного в глицерин, облучалась двумя идентичными импульсами с задержкой между ними 200 мкс. Энергия в обоих импульсах изменялась с помощью полуволновой пластинки и поляризатора. Плотность энергии (флюенс  $F$ ) на поверхности образца в гауссовом пятне варьировалась от  $F_0 = 0.6$  до  $1.7F_a$ ; здесь  $F_0$  – падающая плотность энергии в центре пятна,  $F_a$  – порог абляции кремния для однократного воздействия в глицерине на длине волны  $\lambda = 1028$  нм (это  $\lambda$  в вакууме), составивший  $0.44$  Дж/см<sup>2</sup>. Порог абляции определен по методике [16].

Для исследования топографии модифицированной поверхности мы использовали атомно-силовой микроскоп (АСМ) в полуконтактном режиме с радиусом сканирующего зонда  $< 10$  нм. Вертикальное разрешение составляет 0.05 нм. Пример применения АСМ показан на рис. 2В (синяя кривая). Для анализа приповерхностных слоев и подповерхностных структурных изменений применили просвечивающую электронную микроскопию (ПЭМ), см. рис. 2А. Для этого методом фокусированного ионного пучка (ФИП) вырезалась ламель толщиной около 100 нм.

На рисунке 2 представлена структура, полученная в результате воздействия двух ФЛИ с  $F_0 = 1.02F_a$ . После воздействия 1-го ФЛИ на поверхности формируется параболическая микроямка диаметром 4 мкм [15]. Глубина ямки (6 нм) и высота ва-

лика вокруг нее (7 нм) очень малы по сравнению с ее диаметром. Поэтому при электродинамическом расчете мы пренебрегали существованием этого слабого рельефа. Как говорилось выше, 1-й ФЛИ формирует пузырек. В результате воздействия в ту же область 2-го ФЛИ на поверхности за счет дифракции на пузырьке формируется гораздо более глубокая (по сравнению с рельефом после 1-го ФЛИ) циркулярная ямка, окруженная высокими валиками (рис. 2). Резкое углубление рельефа при относительно небольшом увеличении флюенса по сравнению с  $F_0$  (в 1.6 раза, красная кривая на рис. 2В) вызвано в основном изменением геометрии и сокращением размера – вместо фокального пятна диаметром 6 мкм имеем дифракционное кольцо шириной 0.6 мкм (ширина пика красной кривой на полувысоте от максимума).

## 3. О размерах микропузырька.

При облучении 1-м ФЛИ пузырька нет, и задача о взаимодействии ФЛИ с веществом является стандартной. Глубина  $D$  поглощения излучения в кремнии при комнатной температуре велика (микроны). Темп ионизации валентных электронов через щель в зону проводимости и соответственно темп роста  $dn/dt$  концентрации  $n$  электрон-дырочной плазмы растет с увеличением интенсивности лазерного импульса. Глубина  $D(t)$  с течением времени уменьшается. Показатель преломления меняется с изменением концентрации плазмы  $n(z, t)$ , которая зависит от времени и глубины  $z$ ;  $z = 0$  на границе с глицерином. Максимум концентрации располагается на границе  $z = 0$ . Концентрация  $n(z = 0, t)$  возрастает во время действия импульса.

При наших интенсивностях величина  $n(z = 0, t)$  начинает превышать критическую плотность в момент  $t_h$  во время действия импульса:  $t_h < \tau_L$ . Критической является концентрация  $n_{cr}$ , при которой плазменная частота  $\sqrt{4\pi n_{cr}(z = 0, t)e^2/m}$  начинает превосходить частоту лазерного излучения. При этом толщина  $D$  сокращается от значений в тысячи нм до значений в десятки нм, и ситуация становится аналогичной ситуации в металлах с поглощением излучения в скин-слое.

Нами выполнены серии гидродинамических (ГД) и молекулярно-динамических (МД) расчетов, в которых мы опустили стадию роста концентрации  $n$  до критического значения  $n_{cr}$ . Данная стадия несущественна для описания нагрева и последующего гидродинамического движения, поскольку разогрев тонкого (десятки нм) приповерхностного слоя происходит на временах  $t > t_h$  во время действия ФЛИ. При этом гидродинамическое движение начинается значительно позже окончания ФЛИ:  $t \sim t_s \gg \tau_L$ ,

$t_s \sim 10$  пс,  $\tau_L = 0.27$  пс. Наши ГД и МД расчеты описывают ситуацию после металлизации приповерхностного слоя кремния:  $t > t_h$ ,  $n > n_{cr}$ . Для моделирования использована изученная нами ранее для других приложений пара алюминий-вода, которая имеет примерно такое же отношение акустических импедансов  $Z_{Al}/Z_{H_2O} = 9.5$ , как кремний-глицерин  $Z_{Si}/Z_{Gl} = 6.3$ . Закономерности движения будут аналогичными для этих двух пар.

Основной вопрос, который мы задаем себе – как получить столь малый пузырек с радиусом от нескольких сот нм? Нетривиальный новый эффект, обнаруженный нами, заключается в том, что при поглощенных флюенсах  $F_{abs}$  ниже порога абляции  $F_{abs} < F_a$  происходит механический отрыв жидкости от мишени. Это связано с тем, что за счет когезии в конденсированном веществе мишени при  $F_{abs} < F_{nucl}$  (или за счет комбинированного действия когезии и поверхностного натяжения при  $F_{nucl} < F_{abs} < F_a$ ) граница мишени останавливается и поворачивает назад, тогда как жидкость продолжает движение по инерции;  $F_{nucl}$  – порог нуклеации, выше которого в расплаве появляются жизнеспособные зародыши паровой фазы. Причем указанный разрыв контакта имеет место на временах порядка нескольких акустических масштабов времени в мишени  $t_s = d_T/c_s$ , здесь  $d_T$  – толщина прогретого слоя (20–40 нм),  $c_s$  – скорость звука в мишени. Величина  $t_s \sim 10$  пс, т.е. отрыв (разрыв контакта жидкость–мишень) происходит на ранней стадии. В результате резко снижается тепловой поток, идущий от горячей мишени в жидкость. Соответственно уменьшается толщина прогретого слоя жидкости  $z_T$ . А значит, сокращается и радиус пузырька  $R$ , который позже формируется из вещества жидкости этого слоя.

Такого рода ухудшение теплопередачи невозможно при обычных условиях фемтосекундной абляции в жидкость [13], поскольку облучение идет существенно выше порога абляции  $F_a$ . При  $F_{abs} > F_a$  потери теплового контакта нет, нагрев продолжается долго, поэтому значения радиуса пузырька  $R$  больше. При наносекундной абляции в жидкость давления всегда положительные (нет зон отрицательных или нулевых давлений, лагранжевы частицы в цепочке всегда прижаты друг к другу) и механических разрывов (откола) нет. Сказанное о сепарации  $H_2O$  от  $Al$  проиллюстрировано на рис. 3 и 4. Скорость  $\Delta u$  движения налево края воды равна 30 м/с. Грубая оценка времени формирования пузырька  $R/\Delta u$  размером  $R \sim 1$  мкм равна 30 пс.

Расчеты (рис. 3, 4) выполнены с помощью гидрокода, см. [13]. Детали выходят за рамки письма и тре-

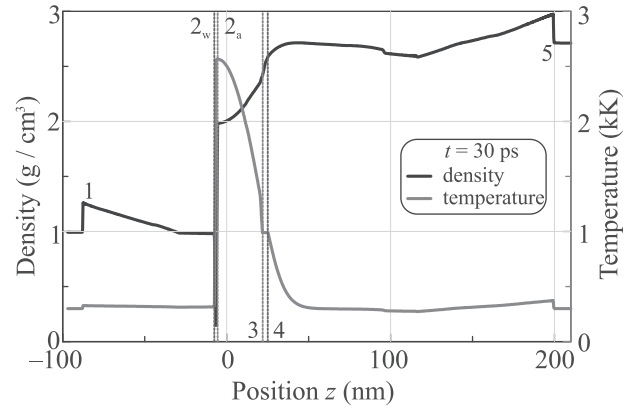


Рис. 3. (Цветной онлайн) Профили плотности (черная кривая) и температуры (красная кривая) после отделения жидкости от мишени, полученные в ГД расчете. Метки 1–5 суть: 1 – ударная волна (УВ) в воде; 2 – контакт  $H_2O-Al$  с начальным положением  $z = 0$ ; 3–4 – зона плавления  $Al$ , слева жидкая фаза, справа – твердая; 5 – УВ в мишени. Контакт расщепился и образовались два берега – со стороны воды  $2_w$ , со стороны алюминия  $2_a$ . Появился слой однодородного течения в воде, который прилегает к границе  $2_w$  и расширяется вслед за УВ в воде со скоростью звука

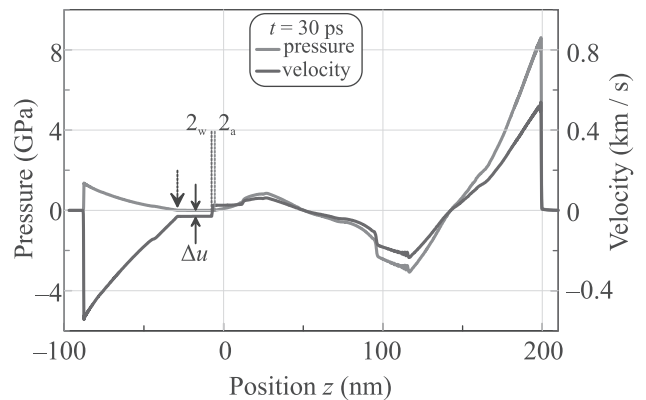


Рис. 4. (Цветной онлайн) Профили давления (красная кривая) и скорости (синяя кривая) после формирования зазора  $2_w-2_a$  между  $H_2O$  и  $Al$  в ГД расчете. Давление в пустом зазоре (испарение мало) и в прилегающих к зазору участках воды и алюминия равно нулю. Участок нулевого давления в воде находится между левой стрелкой и точкой  $2_w$ . Двойной стрелкой показана скорость  $\Delta u$  смещения влево границы воды  $2_w$ , см. текст

буют дополнительного изложения. Параметры задачи описаны в разделе 2. Представление алюминия основано на широкодиапазонном уравнении состояния [17–21]. Вода моделируется с помощью уравнения типа Ми–Грюнайзена, см. [22, 13]. Это уравнение хорошо аппроксимирует механические свойства воды.

В нашей постановке в гидрокде не учитывается теплопроводность воды (хотя температура поверхности мишени высокая, см. рис. 3). Поэтому нагрев воды обязан только диссипации в ударной волне (УВ). При нашей амплитуде УВ этот нагрев мал. Соответственно разрыв  $2_w-2_a$  на рис. 3 и 4 не заполняется парами воды – давление в результате сепарации падает до нуля.

Другая серия расчетов выполнена с помощью МД кода, см. раздел 5. Здесь присутствует атомная теплопроводность жидкости. Отметим, что параметры воды и глицерина близки – скорость звука различается на треть, плотность отличается на четверть, поверхностное натяжение примерно одинаковое, критические параметры глицерин/вода:  $T_c$  850/647 К,  $p_c$  75/220 атм. Вязкость отличается сильно, но это становится существенным только после формирования пузырька. В МД применяется описание воды [23, 24], которое дает близкие к реальности значения механических характеристик (плотность, скорость звука), температура плавления и  $T_c$  немного ниже, чем в природной воде. Теплопроводность в широком диапазоне плотностей и температур по порядку величины такая же, как у воды.

Из-за конечной теплопроводности в МД имеется нагрев жидкости от горячей мишени. Типичная ситуация показана на рис. 5–7. Ультракраткий нагрев

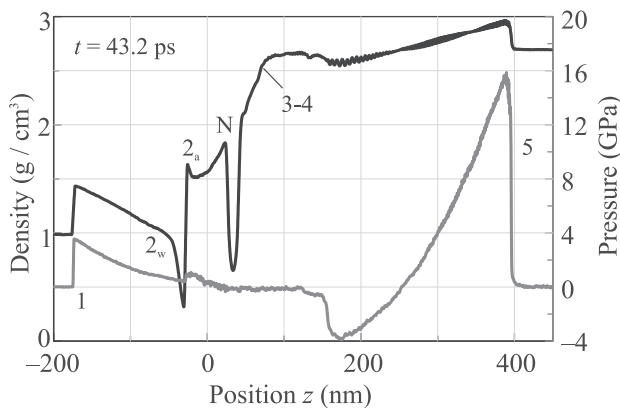


Рис. 5. (Цветной онлайн) Профили плотности и давления в МД моделировании. Смысл меток 1–5 такой же, как на рис. 3. N – зона нуклеации.  $2_a$ –N – откольная пластина, которая оторвалась бы при  $F_{abs} > F_a$ . В этом расчете  $F_{nucl} < F_{abs} < F_a$ , т.е. нуклеация есть, но отрыва пластины не происходит

порождает две УВ (ср. с рис. 3, 4). Нас интересуют явления в приконтактной зоне 2. На момент, показанный на рис. 5–7, давление в ней 4 кбар – на порядок выше критического давления  $p_c$ . Малый подъем давления на левом краю пластины 2–N связан с бега-

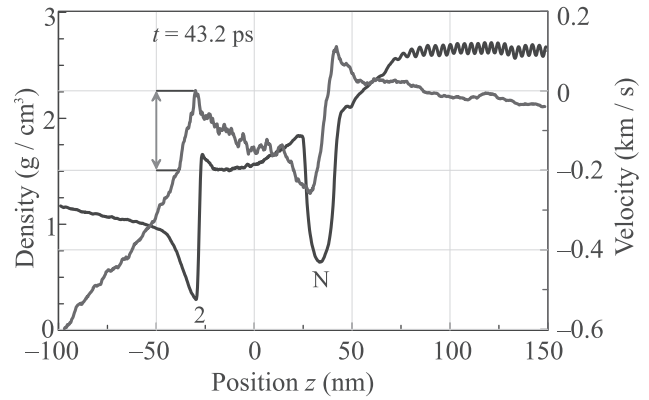


Рис. 6. (Цветной онлайн) Давление нагретой воды в зоне 2 способствует расширению этой зоны в МД расчете. Красная двойная стрелка дает скорость расширения 200 м/с

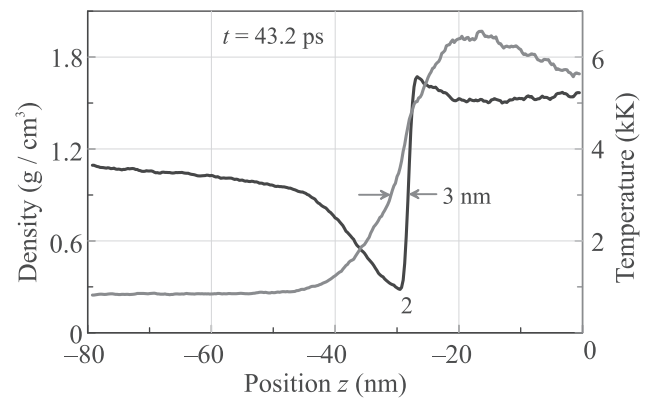


Рис. 7. (Цветной онлайн) МД распределение температуры в горячем приконтактном слое 2, также см. рис. 6. Ширина зоны разложения 3 нм указана для  $T > 3$  kK

ющей внутри пластины акустической волной [25–28]. Пространственные биения профиля в кристаллической фазе (правее зоны плавления 3–4 на рис. 5, 6) возникают из-за малости сеточного шага, который соизмерим с периодом решетки кристалла.

Из-за нагрева воды теплопроводностью нет ситуации с разрывом контакта, как в гидрокде (ср. рис. 3, 4). Соответственно в зоне 2 нет снижения давления до нуля, но плотность в ней существенно уменьшается, см. рис. 5–7. Снижение плотности связано с двумя факторами. Во-первых, расширение зазора 2 из-за механического растяжения, обусловленного инерцией воды и торможением границы вещества мишени (как в гидрокде). Во-вторых, под действием собственного давления горячей воды в зоне 2. Причем, видимо, 1-й фактор важнее, поскольку градиент давления на рис. 5 направлен в сторону, обратную расширению.

Из баланса масс можно составить оценку размера микропузырька (основная цель данного раздела). Запишем  $\rho_{hw}\pi R_L^2 z_T = \rho_g (4/3)\pi R^3$ . Слева стоит масса диска с радиусом  $R_L = 3$  мкм (радиус гауссова пучка) и толщиной  $z_T$ . Эта толщина выделена на рис. 7 красными стрелками на уровне температуры 4 кК. Диск наполнен горячей водой с плотностью  $\rho_{hw} \approx 0.3$  г/см<sup>3</sup>, см. рис. 7. Справа в балансе масса пузырька:  $\rho_g$  – плотность газа,  $R$  – радиус пузырька. Отсюда

$$R/R_L = 0.9(A/\Gamma)^{1/3}, \quad A = \rho_{hw}/\rho_g, \quad \Gamma = R_L/z_T.$$

Видим, что отношение радиусов  $R/R_L$  определяется делением двух больших чисел (оба порядка  $10^3$ ): отношением плотностей  $A$  (плотность порядка плотности конденсированной фазы отнесена к плотности газа при давлении порядка 1 атм) и геометрическим фактором  $\Gamma$ . Давление в пузырьке радиусом 500 нм в глицерине равно 3.4 атм (1 атм – внешнее давление, 2.4 атм – это  $2\sigma/R$ ).

В пузырьках миллиметровых размеров, при их 1-й осцилляции [29, 30], содержится в основном испаренная жидкость. Объем вычисляется с помощью адиабат жидкости, продолженных до давления в 1 атм, см. рис. 11 в [13]. В нашей ситуации с микропузырьками  $R \sim 1$  мкм длина свободного пробега молекулы пара порядка  $R$  – кнудсеновский режим: время пролета пузырька молекулой  $\sim 10$  нс. Понятно, что паровой пузырек не может существовать 200 мкс, поскольку за это время и жидкость, и мишень остынут до комнатной температуры и пар сконденсируется. Таким образом, наш пузырек должен быть наполнен газообразными продуктами разложения глицерина.

Видимо, в нанометровом слое у горячей стенки (см. красные стрелки на рис. 7) происходит разложение глицерина. Об образовании газовых (не паровых) пузырьков при абляции в жидкость см. статью [31]. На сегодня неясно, какая массовая доля этого горячего слоя останется в газовом состоянии на временах в сотни микросекунд в наших опытах. Понятно, что падение этой доли меньше единицы в приведенном выше балансе масс (левая сторона уравнения) уменьшает радиус пузырька  $R$ .

**4. Электродинамическое моделирование.** Моделирование производилось методом конечных элементов с помощью Comsol Multiphysics. Задача о падении гауссова пучка с радиусом пучка  $R_L = 3$  мкм на кремний решалась в осесимметричной постановке, для циркулярно поляризованного по часовой стрелке и циркулярно поляризованного против часовой стрелки гауссова пучка. Затем на основе двух решений для циркулярно поляризованных

гауссовых пучков строилось решение для линейно-поляризованного гауссова пучка (реализованного в эксперименте).

Численное моделирование производилось для двух случаев. Первый случай соответствовал облучению поверхности кремния 1-м ФЛИ. При этом над поверхностью кремния со стороны падающего светового импульса располагался однородный глицерин. Второй случай соответствовал облучению поверхности кремния 2-м ФЛИ. При этом над поверхностью кремния располагался газовый пузырек (с центром на оси падения импульса) в виде сферы или усеченной сферы с радиусом  $R$  и с расстоянием  $d$  от поверхности кремния до центра сферы, см. пример на рис. 1. Коэффициенты преломления кремния, глицерина и газа равны  $3.566 + 2.6 \cdot 10^{-4} i$ , 1.46 и 1 при  $\lambda = 1028$  нм.

В задаче о 1-м ФЛИ было рассчитано пространственное распределение поглощаемой в кремнии мощности. Была найдена максимальная (на оси пучка) интенсивность  $I_G$  электрического поля в кремнии на глубине 20 нм при заданной энергии импульса. В дальнейшем эта величина использовалась для нормировки пространственного перераспределения интенсивности 2-го импульса в кремнии.

В результате моделирования падения второго импульса на поверхность кремния при наличии в глицерине газового пузырька было найдено трехмерное распределение интенсивности  $I(r, z)$  электрического поля 2-го импульса в кремнии, где  $r$  – цилиндрический радиус, отсчитанный от оси,  $z$  – расстояние до поверхности кремния по нормали к ней. Таким образом, в пренебрежении нелинейными оптическими эффектами нормированное распределение  $I(r, z)/I_G$  оказывается не зависящим от энергии импульса (энергии 1-го и 2-го импульса равны). Пример расчета показан на рис. 1 и 2 (красная кривая).

**5. Молекулярная динамика.** Прямое атомистическое моделирование глицерина и кремния сильно затруднено сложностью межатомного взаимодействия в этих веществах, а также между атомом Si и молекулой глицерина. Поэтому МД моделирование было проведено для пары веществ с близкими механическими параметрами, а именно, плотностью и скоростью звука. Глицерин представляла атомарная модель воды (молекула как точечная частица) с потенциалом [24], а кремний – модель алюминия с ЕАМ потенциалом [32]. Межатомное взаимодействие “атома” воды и кремния описывалось Леннард-Джонсовским потенциалом с положением минимума, равном сумме ван-дер-Ваальсовых радиусов атомов кремния (0.21 нм) и кислорода (0.152 нм), и ма-

лой глубиной потенциальной ямы  $\varepsilon/k_B = 113$  К, как между молекулами кислорода.

По вертикали (ось  $z$ ) слой воды толщиной 200 нм покрывал слой алюминия в 200 нм. Вертикальный размер расчетной области  $L_z = 500$  нм, причем верхняя граница воды и нижняя граница кремния были свободными, при незначительной плотности паров воды над ними. По горизонтальной оси расчетная область была  $L_x = 400$  нм, и вещества полностью заполняли ее. Так как рассматривалась плоская задача, то размер области по оси  $y$  был небольшой,  $L_y = 10$  нм. По всем трем осям накладывались периодические граничные условия. Всего в системе было примерно  $48 \times 10^6$  атомов алюминия и  $26 \times 10^6$  “атомов” воды.

Перед тем как произвести лазерный нагрев алюминия, система приводилась в механическое и термодинамическое равновесие при  $p \approx 0$  и  $T = 300$  К при помощи термостата Ланжевена. Затем с помощью этого термостата производился быстрый нагрев центрального пятна на поверхности алюминия с шириной полосы в  $l_x = 160$  нм, что примерно в  $M = 6.4$  раза меньше, чем в экспериментальном случае, показанном на рис. 2. Для установления подобия между моделированием и экспериментом масштабный фактор  $M$  используется для определения глубины прогрева в МД расчете, а также для сравнения расчетных и экспериментальных профилей поверхности алюминия/кремния, см. рис. 2.

Распределение целевой температуры по глубине было выбрано гауссовым, а по ширине – приближенным по форме к гауссову распределению  $T(x) = T_0 \cos^2(\pi x/l_x) + 300$  К, что дает температурное поле  $T(x, z) = T_0 \cos^2(\pi x/l_x) \exp[-(z/h)^2] + 300$  К, где глубина прогрева  $h = 20$  нм,  $|x| < l_x/2$ . Нагрев атомов алюминия велся в течение 1 пс, что типично для времени передачи энергии от электронной к ионной подсистеме в алюминии. Для исключения торможения термостатом разгона вещества в плоскости  $xz$ , нагрев велся только по  $y$ -компоненте скорости. Передача тепловой энергии в другие поступательные степени свободы происходила в результате межатомных столкновений.

**Заключение.** В работе экспериментально и теоретически исследованы особенности воздействия на поверхность кремния, погруженного в жидкость, двух фемтосекундных лазерных импульсов, следующих с субмиллисекундной временной задержкой. Специфика такого воздействия заключается в образовании микронного газового пузырька после воздействия 1-го импульса и рассеяния на нем 2-го импульса с образованием кольцевой дифракционной карти-

ны, приводящей к необычно глубокой модуляции поверхностного рельефа.

Высота структур на кремнии, формируемых по данной методике, составляет сотни нанометров. И это при низкой и умеренной энергетике воздействия, которая не сопровождается существенной потерей массы мишени. Без пузырька рельефы гораздо менее выражены, их высота на 1–2 порядка ниже. Имея в виду приложения, отметим, что технически более сложной альтернативой для создания субмикронных структур является применение УФ излучения на дифракционном пределе.

С помощью развитой теоретико-численной модели объяснены и получены количественные данные об особенностях образования и размерах газового пузырька, механизме “слабой теплопроводности”, дифракции излучения, формировании нанорельефа. Для решения проблемы разработан гибридный вычислительный подход, опирающийся на физическую специфику проблемы лазерного воздействия в жидкости. Подход состоит в применении дополняющих друг друга численных кодов: гидродинамика с реальными уравнениями состояния и учетом фазовых переходов, электродинамика, и молекулярная динамика модельной системы.

Авторы (В. В. Жаховский, С. А. Ромашевский, С. И. Ашитков, Н. А. Иногамов) – выполнившие эксперимент, МД моделирование и разработку физической модели – благодарят Российский научный фонд (грант #19-19-00697) за поддержку. В. А. Хохлов, выполнивший ГД расчет, благодарит Министерство науки и высшего образования РФ за финансовую поддержку (соглашение с ОИВТ РАН # 075-15-2020-785).

1. E. Stratakis, M. Barberoglou, C. Fotakis, G. Viau, C. Garcia, and G. A. Shafeev, *Optics Express* **17**(15), 12650 (2009).
2. D. Zhang, B. Gokce, and S. Barcikowski, *Chem. Rev.* **117**(5), 3990 (2017).
3. A. V. Kabashin, A. Singh, M. T. Swihart, I. N. Zavestovskaya, and P. N. Prasad, *ACS Nano* **13**(9), 9841 (2019).
4. S. I. Kudryashov, A. A. Samokhvalov, A. A. Nastulyavichus, I. N. Saraeva, V. Y. Mikhailovskii, A. A. Ionin, and V. P. Veiko, *Materials* **12**(4), 562 (2019).
5. C. Unger, J. Koch, L. Overmeyer, and B. N. Chichkov, *Opt. Express* **20**(22), 24864 (2012).
6. Y. Nakata, N. Miyanaga, K. Momoo, and T. Hiromoto, *Appl. Surf. Sci.* **274**, 27 (2013).
7. D. S. Ivanov, A. I. Kuznetsov, V. P. Lipp, B. Rethfeld, B. N. Chichkov, M. E. Garcia, and W. Schulz, *Appl. Phys. A* **111**, 675 (2013).

8. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, and V. A. Khokhlov, *JETP* **120**(1), 15 (2015).
9. S. V. Starikov and V. V. Pisarev, *J. Appl. Phys.* **117**, 135901 (2015).
10. A. A. Kuchmizhak, A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, A. A. Rudenko, Yu. N. Kulchin, O. B. Vitrik, and T. V. Efimov, *Opt. Lett.* **40**(8), 1687 (2015).
11. A. Kuchmizhak, O. Vitrik, Yu. Kulchin, D. Storozhenko, A. Mayor, A. Mirochnik, S. Makarov, V. Milichko, S. Kudryashov, V. Zhakhovsky, and N. Inogamov, *Nanoscale* **8**, 12352 (2016).
12. Yu. V. Petrov, V. A. Khokhlov, V. V. Zhakhovsky, and N. A. Inogamov, *Appl. Surf. Sci.* **492**, 285 (2019).
13. N. A. Inogamov, V. A. Khokhlov, Yu. V. Petrov, and V. V. Zhakhovsky, *Optical and Quantum Electronics* **52**, 63 (2020).
14. S. A. Romashevskiy, S. I. Ashitkov, and M. B. Agranat, *Opt. Lett.* **45**(4), 1005 (2020).
15. S. A. Romashevskiy, S. I. Ashitkov, and M. B. Agranat, *Appl. Phys. Lett.* **109**(26), 261601 (2016).
16. J. M. Liu, *Opt. Lett.* **7**(5), 196 (1982).
17. A. V. Bushman, G. I. Kanel', A. L. Ni, and V. E. Fortov, *Intense dynamic loading of condensed matter*, Taylor & Francis, Washington, DC (1993).
18. K. V. Khishchenko, *High Temp.* **35**(6), 991 (1997).
19. I. V. Lomonosov, *Laser and Particle Beams* **25**, 567 (2007).
20. И. В. Ломоносов, В. Е. Фортов, Я. Б. Зельдович, *УФН* **184**, 231 (2014) [*Phys. Usp.* **57**, 219 (2014)].
21. K. V. Khichshenko, *Math. Montis.* **40**, 140 (2017).
22. R. I. Nigmatulin and R. Kh. Bolotnova, *High Temp.* **49**(2), 303 (2011).
23. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, and V. A. Khokhlov, *JETP* **127**(1), 79 (2018).
24. V. V. Zhakhovsky, Tabulated EAM potential for water can be downloaded from [www.researchgate.net/project/Development-of-interatomic-EAM-potentials](http://www.researchgate.net/project/Development-of-interatomic-EAM-potentials).
25. T. Antoun, L. Seaman, D. R. Curran, G. I. Kanel, S. V. Razorenov, and A. V. Utkin, *Spall Fracture (Shock Wave and High Pressure Phenomena)*, Springer, N.Y., Berlin, Heidelberg (2003).
26. G. I. Kanel, S. V. Razorenov, and V. E. Fortov, *Shock-Wave Phenomena and the Properties of Condensed Matter*, Springer, N.Y., Berlin, Heidelberg (2004).
27. G. I. Kanel', V. E. Fortov, and S. V. Razorenov, *Phys. Usp.* **50**, 771 (2007).
28. B. J. Demaske, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, and I. I. Oleynik, *Phys. Rev. B* **82**, 064113 (2010).
29. J. Lam, J. Lombard, Ch. Dujardin, G. Ledoux, S. Merabia, and D. Amans, *Appl. Phys. Lett.* **108**(7), 074104 (2016).
30. K. Sasaki and N. Takada, *Pure Appl. Chem.* **82**(6), 1317 (2010).
31. M.-R. Kalus, N. Bäsch, R. Streubel, E. Gökce, S. Barcikowski, and B. Gökce, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **19**, 7112 (2017).
32. V. V. Zhakhovskii, N. A. Inogamov, Yu. V. Petrov, S. I. Ashitkov, and K. Nishihara, *Appl. Surf. Sci.* **255**(24), 9592 (2009).