VILNIAUS UNIVERSITETAS FIZINIŲ IR TECHNOLOGIJOS MOKSLŲ CENTRO FIZIKOS INSTITUTAS

Mindaugas Gedvilas

PLONŲ METALŲ SLUOKSNIŲ SAVITVARKOS LAZERIO SPINDULIUOTĖS POVEIKYJE TYRIMAS IR MODELIAVIMAS

Daktaro disertacijos santrauka Technologijos mokslai, Medžiagų inžinerija (08T) Lazerinė technologija (T165) Disertacija rengta 2006-2011 metais Fizinių ir Technologijos Mokslų centro Fizikos institute.

Mokslinis vadovas:

Dr. Gediminas Račiukaitis (Fizinių ir technologijos mokslų centro Fizikos institutas, technologijos mokslai, medžiagų inžinerija - 08T, lazerinė technologija - T165).

Disertacija ginama Vilniaus Universiteto Medžiagų inžinerijos krypties taryboje:

Pirmininkas:

Prof. habil. dr. Valerijus Smilgevičius (Vilniaus universitetas, technologijos mokslai, medžiagų inžinerija - 08T, lazerinė technologija - T165).

Nariai:

- 1. Prof. habil. dr. Aleksandr Dementjev (Fizinių ir technologijos mokslų centro Fizikos institutas, technologijos mokslai, medžiagų inžinerija 08T, lazerinė technologija T165).
- 2. Prof. habil. dr. Eugenijus Šatkovskis (Vilniaus Gedimino technikos universitetas, technologijos mokslai, medžiagų inžinerija 08T, lazerinė technologija T165).
- 3. Doc. dr. Andrius Melninkaitis (Vilniaus universitetas, technologijos mokslai, medžiagų inžinerija 08T, lazerinė technologija T165).
- 4. Doc. dr. Viktoras Grigaliūnas (Kauno technologijos universitetas, technologijos mokslai, medžiagų inžinerija 08T, lazerinė technologija T165).

Oponentai:

- 1. Prof. habil. dr. Alfonsas Grigonis (Kauno technologijos universitetas, technologijos mokslai, medžiagų inžinerija 08T, lazerinė technologija T165).
- 2. Doc. dr. Vincas Tamošiūnas (Vilniaus universitetas, technologijos mokslai, medžiagų inžinerija 08T, lazerinė technologija T165).

Disertacija bus ginama viešame Medžiagų inžinerijos krypties tarybos posėdyje 2011 m. lapkričio mėn. 8 d. 10 val. FTMC Fizikos instituto salėje, Savanorių pr. 231, LT-02300 Vilnius, Lietuva.

Disertaciją galima peržiūrėti Vilniaus universiteto ir FTMC bibliotekose.

VILNIUS UNIVERSITY CENTER FOR PHYSICAL SCIENCES AND TECHNOLOGY INSTITUTE OF PHYSICS

Mindaugas Gedvilas

SELF-ORGANIZATION IN THIN METAL FILMS UNDER LASER IRRADIATION

Summary of doctoral dissertation Technological Sciences, Material Engineering (08T) Laser Technology (T165) The research was performed in Institute of Physics of Center for Physical Sciences and Technology in 2006-2011.

Scientific supervisor:

Dr. Gediminas Račiukaitis (Institute of Physics of Center for Physical Sciences and Technology, technological sciences, material engineering - 08T, laser technology - T165).

Doctoral dissertation will be defended at the Council of Material engineering of Vilnius University:

Chairman:

Prof. habil. dr. Valerijus Smilgevičius (Vilnius University, technological sciences, material engineering - 08T, laser technology - T165).

Members:

- 1. Prof. habil. dr. Aleksandr Dementjev (Institute of Physics of Center for Physical Sciences and Technology, technological sciences, material engineering 08T, laser technology T165).
- 2. Prof. habil. dr. Eugenijus Šatkovskis (Vilnius Gediminas Technical University, technological sciences, material engineering 08T, laser technology T165).
- 3. Doc. dr. Andrius Melninkaitis (Vilnius University, technological sciences, material engineering 08T, laser technology T165).
- 4. Doc. dr. Viktoras Grigaliūnas (Kaunas University of Technology, technological sciences, material engineering 08T, laser technology T165).

Opponents:

- 1. Prof. habil. dr. Alfonsas Grigonis (Kaunas University of Technology, technological sciences, material engineering 08T, laser technology T165).
- 2. Doc. dr. Vincas Tamošiūnas (Vilnius University, technological sciences, material engineering 08T, laser technology T165).

This thesis will be under open consideration on the 8 of November, 2011 10 a.m. at the Hall of CPST Institute of Physics, Savanoriu Ave. 231, LT-02300 Vilnius, Lithuania.

Doctoral thesis is available at libraries of Vilnius University and CPST.

TURINYS

1	ĮVA	ADAS	6
	1.1	DISERTACIJOS DARBO TIKSLAS	6
	1.2	DARBO NAUJUMAS IR PAKTINĖ SVARBA	7
	1.3	GINAMIEJI TEIGINIAI	7
	1.4	APROBACIJA	8
	1.5	AUTORIAUS IR BENDRAAUTORIŲ INDĖLIS	9
	1.6	DISERTACIJOS SANDARA	. 10
2	LIT	TERATŪROS APŽVAGA	.11
	2.1	LAZERIO SPINDULIUOTĖS SUKELTI PERIODINIAI PAVIRŠIAUS DARINIAI IR	
	RAIBU	LIŲ TIPAI	.11
	2.2	PLATO-REILIO NESTABILUMAS IR MARANGONI KONVEKCIJA	.11
	2.3	DANGOS SUKIBIMAS SU STIKLO PADEKLU	.12
3	TY	RIMO METODAI	.13
	3.1	RAIBULIŲ FORMAVIMO EKSPERIMENTO SCHEMA	. 13
	3.2	METALŲ DANGŲ ABLIACIJOS SLENKSČIAI	.14
	3.3	GARDELIŲ CHARAKTERIZAVIMO EKSPERIMENTO SCHEMA	.14
4	RA	IBULIŲ FORMAVIMASIS CHROMO DANGOJE	.15
	4.1	CHROMO DANGOS ABLIACIJA SU NEPERSIKLOJANČIAIS LAZERIO IMPULSAIS	.15
	4.2	CHROMO DANGOS ABLIACIJA SU PERSILOJANČIAIS LAZERIO IMPULSAIS	.15
	4.3	IŠVADOS	.17
5	PE	RIODINIŲ GARDELIŲ GAMYBA	.18
	5.1	PERIODINIŲ GARDELIŲ GAMYBA	.18
	5.2	GARDELĖS PERIODO VALDYMAS	.18
	5.3	IŠVADOS	. 19
6 D	RA	IBULIŲ FORMAVIMASIS ALIUMINIO, VARIO, AUKO IR SIDABO	20
υ	ANGU		20
	6.2	ALIUMINIO, VARIO IR SIDABRO DANGOSE RAIBULIAI NESUSIDARO	.20
	6.3	IŠVADOS	.21
7	RA	IBULIU FORMAVIMOSI MODELIAVIMAS	.22
	71		22
	7.2	PLATO-REILIO NESTABILUMAS CILINDRINĖS UŽVARTOS SUSIDARYME	23
	7.3	MARANGONI KONVEKCIJA NUSISTOVĖJUSIAME RAIBULIU FORMAVIMESI	.25
	7.4	IŠVADOS	.27
IŠ	ŚVADŲ	J SĄRAŠAS	.28
L	ITERA	ATŪROS SĄRAŠAS	.29
S	ANTR	- AUKA ANGLŲ KALBA (SUMMARY)	.31
Т	RIIMP	POS ŽINIOS APIE DOKTORANTA	.32

1 ĮVADAS

Metalinės dangos ant stiklo padėklo yra plačiai tyrinėjamos ir naudojamos pramonėje. Chromo danga ant stiklo yra svarbi medžiaga litografijos kaukių [1], difrakcinių gardelių [2], kodinių stiklinių liniuočių optinei metrologijai gamyboje [3]. Aliuminio ir sidabro dangos yra naudojamos kaip veidrodžiai [4], aukso danga yra plačiai taikoma biologinių lustų padėklų biomedicinoje gamybai [5].

Lazeriai dažnai taikomi metalinių paviršių struktūrizavimui vietoje cheminio ar plazminio ėsdinimo [6]. Vykdant lazerinį mikroapdirbimą ir siekiant sumažinti termiškai paveiktos zonos dydį, dažnai naudojamos mažesnės energijos impulsų sekos. Tačiau dirbant arti abliacijos slenksčio, formuojasi paviršiniai raibuliai (*angl. ripples*) arba lazeriu sukelti periodiniai paviršiaus dariniai [7]. Paviršiniai metalo dangų dariniai lazerio spinduliuotės poveikyje dažnai yra nepageidaujamas efektas, tačiau jų savaiminis formavimasis yra lankstus metodas, mikro- ir nano-struktūrizavimui, funkcinių paviršių formavimui [8]. Lazerinis tiesioginis užrašymas (*angl. laser direct writing*), naudojant abliaciją femtosekundiniu lazeriu iš dangos ir padėklo pusės buvo taikomas foto-šablonų gamybai [9]. Naudojant abliaciją iš padėklo pusės, metalinė danga buvo pašalinama mikro sprogimo metu dėl susikaupusių dujų metalo ir padėklo sandūroje. Sub-banginis tikslumas buvo pasiektas su femtosekundiniu lazeriniu ir buvo taikomas kaukių litografijos remontui [10].

Vykdant industrinį projektą kartu su "Precizika Metrology", mūsų laboratorijoje buvo kuriama lazerinė technologija kodinių stiklinių liniuočių gamybai. Aštriai į siaurą juostą sufokusuotas lazerio pluoštas buvo naudojamas chromo dangos nugarinimui nuo stiklo padėklo iš stiklo pusės. Buvo pagamintos optinės stiklinės liniuotės su kelių mikrometrų periodu. Vienu lazerio impulsu nuvalytos juostos kraštuose formavosi perlydyto chromo užvartos. Kai buvo abliuojama su dalinai persiklojančiais lazerio impulsais, buvo stebimas neįprastas perlydyto chromo elgesys [11]. Esant tam tikram lazerio energijos tankui ir impulsų persiklojimui, persilydęs chromas savi-organizavosi į periodinius ar kvazi-periodinius raibulius, kurių kryptis buvo statmena linijiniam lazerio pluošteliui ir lygiagreti skenavimo pluošteliu krypčiai. Tai ribojo formuojamų matavimo liniuočių tikslumą ir mažiausią pasiekiamą periodą. Dėl saviorganizacijos susidarančių raibulių elgesys buvo visiškai skirtingas, nei raibulių, kurie stebimi daugelyje medžiagų ir formuojasi, dirbant arti abliacijos slenksčio [12].

Siekiant suprasti fizikinius procesus, kurie sukelia metalo dangos saviorganizaciją į raibulius, buvo vykdomi eksperimentai bei teorinio modeliavimo darbai. Esant tam tikriems lazerinio apdirbimo parametrams, raibulių formavimasis buvo griežtai taisyklingas ir periodinis.

Šioje daktaro disertacijoje pateikiami rezultatai eksperimentinių ir teorinių darbų, tiriant metalo dangos ant stiklo padėklo savi-organizaciją, paveikiant ją į juostą sufokusuotu nanosekundinio lazerio pluoštu. Taip pat yra aprašomas ir išbandomas difrakcinių gardelių formavimo metodas, panaudojant šiame darbe stebimą metalo savitvarką.

1.1 DISERTACIJOS DARBO TIKSLAS

1. Suprasti pagrindinius fizikinius mechanizmus, lemiančius raibulių susidarymą plonoje chromo dangoje.

- 2. Išmokti kontroliuoti raibulių formavimąsi.
- 3. Panaudoti raibulių formavimąsi difrakcinių gardeliu gamybai.
- 4. Ištirti galimą raibulių formavimąsi skirtingų metalų dangose.

1.2 DARBO NAUJUMAS IR PAKTINĖ SVARBA

1.2.1 Darbo naujumas

1. Buvo tiriamas naujas savitvarkos reiškinys lazerio spinduliuotės poveikyje, apdirbant chromo dangą ant stiklo padėklo su skenuojamu į juostą sufokusuoto lazerio pluoštu.

2. Reguliarūs periodiniai raibuliai formavosi tam tikrame lazerinio apdirbimo parametrų diapazone.

3. Buvo nustatyta, kad raibulių užuomazgos formuojasi dėl Plato-Reilio nestabilumo cilindrinių užvartų susidarymo metu.

4. Buvo nustatyta, kad Marangoni konvekcija perlydytame chrome yra pagrindinė nusistovėjusio raibulių susidarymo priežastis.

5. Galimas raibulių formavimasis buvo ištirtas įvairių metalų dangose ant stiklo padėklo. Buvo nustatyta, kad užvartų susidarymas yra esminis reiškinys tolesniam raibulių formavimuisi. Taip pat buvo nustatyta, kad užvartų susidarymas priklauso nuo dangos sukibimo su padėklu bei Marangoni jėgos.

1.2.2 Praktinė svarba

1. Buvo parodyta, kad naujas chromo dangos ant stiklo padėklo savitvarkos reiškinys yra ribojantis veiksnys, gaminant mažo periodo kodines stiklines liniuotes optinei metrologijai.

2. Buvo pasiūlytas ir išbandytas naujas difrakcinių gardelių formavimo metodas su periodo kontrole, panaudojant chromo dangos savitvarką į periodinius raibulius.

1.3 GINAMIEJI TEIGINIAI

1. Abliuojant aštriai į juostą sufokusuotu lazerio pluoštu chromo dangą ant stiklo padėklo, raibulių užuomazgos susidaro dėl Plato-Reilio nestabilumo cilindrinės užvartos formavimosi metu.

2. Nusistovėjęs raibulių formavimasis, apdirbant chromo dangą ant stiklo dalinai persiklojančių impulsų seka, yra sukeltas Marangoni konvekcijos efekto. Terminis paviršiaus įtempimo gradientas stumia išlydytą chromą iš karštesnės vietos į šaltesnę, taip stabilizuodamas periodinių raibulių formavimąsi išilgai skenavimo krypties.

3. Metalinės dangos sukibimas su stiklo padėklu yra esminis faktorius, lemiantis cilindrinių užvartų susidarymą lazerinės abliacijos metu. Užvartoje pasireiškia Plato-Reilio nestabilumas ir susiformuoja raibulių užuomazgos.

4. Raibulių formavimasis chromo dangoje ant stiklo padėklo yra lankstus difrakcinių gardelių gamybos metodas.

1.4 APROBACIJA

Tyrimų rezultatai pateikiami šioje disertacijoje buvo publikuoti 5 straipsniuose [A1-A5] periodiniuose moksliniuose leidiniuose, taip pat kartu su bendraautoriais buvo pristatyti 9 mokslinėse konferencijose [C1-C9]. Iš viso disertanto publikacijų sąrašą sudaro 20 mokslinių straipsnių, bei 38 pranešimų mokslinėse konferencijose.

1.4.1 Publikacijų sąrašas

Publikacijos disertacijos tema žurnaluose, referuojamuose ISI WoS duomenų bazėje:

[A1] M. Gedvilas, B. Voisiat, G. Račiukaitis and K. Regelskis, Self-organization in thin metal films after irradiation with nanosecond laser pulses. *Appl. Surf. Sci.* 255, 9826-9829 (2009).

[A2] M. Gedvilas, G. Račiukaitis, K. Regelskis and P. Gečys, Formation of gratings by self-organization of chromium thin film on the glass substrate under irradiation with laser pulses. *J. Laser Micro/Nanoeng.* **3**, 58-62 (2008).

[A3] M. Gedvilas, G. Račiukaitis and K. Regelskis, Self-organization in chromium thin film under laser irradiation. *Appl. Phys. A. Mater. Sci. Process.* 93, 203-208 (2008).

[A4] K. Regelskis, G. Račiukaitis and M. Gedvilas, Ripple Formation in Chromium Thin Film during Laser Ablation. *Appl. Surf. Sci.* 253, 6584-6587 (2007).

Kitos publikacijos periodiniuose leidiniuose disertacijos tema:

[A5] M. Gedvilas, G. Račiukaitis, K. Regelskis and P. Gečys, Fabrication of gratings by self-organization of thin metal film. *Acta Universitatis Lappeenrantaensis* 273, 482-492 (2007).

1.4.2 Pranešimų konferencijose sąrašas

Pranešimai disertacijos tema mokslinėse konferencijose:

[C1] V. Kučikas, **M. Gedvilas** and S. Grubinskas, *Modeling of Self-organization in Thin Metal Layers under Laser Irradiation*, 54th Scientific Conference for Students of Physics and Natural Sciences "Open Readings 2011", Vilnius, Lithuania, March 17-19, 2011.

[C2] G. Račiukaitis, **M. Gedvilas**, B. Voisiat, E. Molotokaite and K. Regelskis, *Transformations in thin metal films induced by laser irradiation*, The Conference "Northern Optics 2009" (NO 2009), Vilnius, Lithuania, August 26-28, 2009.

[C3] M. Gedvilas, G. Račiukaitis, B. Voisiat and K. Regelskis, *Simulation of ripple formation induced by laser irradiation in chromium film on glass substrate*, "38-oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija", Vilnius, Lithuania, June 8-10, 2009.

[C4] M. Gedvilas, B. Voisiat, G. Račiukaitis and K. Regelskis, *Self-organization in thin metal films after irradiation with nanosecond laser pulses*, "6th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications" (6-ICPEPA), Sapporo, Japan, September 9-12, 2008.

[C5] M. Gedvilas, B. Voisiat, K. Regelskis and P. Gečys, *Ripple formation by laser irradiation and FEMLAB simulation*, 1st International School on "Laser-surface interactions for new materials production: tailoring structure and properties", Venice, Italy, July 13-20, 2008.

[C6] M. Gedvilas, G. Račiukaitis and K. Regelskis, *Self-organization in chromium thin film under laser irradiation*, The 9th International "Conference on Laser Ablation" (COLA 2007), Tenerife, Spain, September 24-28, 2007.

[C7] K. Regelskis, **M. Gedvilas**, G. Račiukaitis and P. Gečys, *Fabrication of gratings by self-organization of thin metal film*, "The 11th Nordic Conference in Laser Materials Processing" (11-NOLAMP), Lappeenranta, Finland, August 20-22, 2007.

[C8] M. Gedvilas, K. Regelskis, P. Gečys and G. Račiukaitis, *Formation of gratings by self-organization of chromium thin film under irradiation with laser pulses*, "37-oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija", Vilnius, Lithuania, June 11-13, 2007.

[C9] M. Gedvilas, G. Račiukaitis, K. Regelskis and P. Gečys, *Formation of gratings by self-organization of chromium thin film on the glass substrate under irradiation with laser pulses*, The International Symposium on "Laser Precision Microfabrication" (LPM 2007), Vienna, Austria, April 24-28, 2007. (Student Poster Award).

1.5 AUTORIAUS IR BENDRAAUTORIŲ INDĖLIS

1.5.1 Autoriaus asmeninis indėlis

Autorius, konsultuodamasis su moksliniu vadovu, išvystė teorinę tyrimų dalį bei dalyvavo, vykdant eksperimentus. Jo asmeninis indėlis apima:

1. Eksperimentinės įrangos ir metodikos tobulinimas ir eksperimentinės įrangos programavimas;

2. Eksperimentinių rezultatų vizualizavimas, modeliavimas, interpretavimas ir ruošimas publikavimui;

3. Gardelių charakterizavimo metodikos ruošimas;

4. Mokslinių publikacijų rašymas ir mokslinių rezultatų pristatymas konferencijose;

5. Vadovavimas studentams: B. Voisiat ir S. Grubinskui projekte "Studentų mokslinė praktika" ir V. Kučikui projekte "Studentų moksliniai tyrimai", eksperimentiškai tiriant ir teoriškai modeliuojant procesus, vykstančius plonuose sluoksniuose lazerio spinduliuotės poveikyje.

1.5.2 Bendraautorių indėlis

Dr. K. Regelskis kartu su dr. G. Račiukaičiu pirmi eksperimentiškai atrado raibulių formavimąsi chromo dangoje ant stiklo padėklo, abliuojant jį aštriai į juostą sufokusuotu nanosekundiniu skenuojamu lazerio pluoštu. Jie užpatentavo šį reiškinį kaip būdą gaminti difrakcines gardelės Lietuvos respublikos valstybiniame patentų biure [11]. Tai buvo mano tyrimų pradžios taškas, siekiant suprasti procesus, susijusius su raibulių formavimusi, ir rasti galimybes kontroliuoti gardelių parametrus.

Kai kurie eksperimentiniai ir modeliavimo darbai buvo atlikti mano vadovaujamų studentų. B. Voisiat eksperimentiškai ištyrė galimą raibulių formavimąsi skirtingų metalų dangose. S. Grubinskas ir V. Kučikas sumodeliavo plonų sluoksnių kaitinimo

lazerio spinduliuote dinamiką ir skysto chromo tekėjimą, naudodami COMSOL Multiphysics programinį paketą.

1.6 DISERTACIJOS SANDARA

Daktaro disertacija, kurios apimtis: 99 puslapiai, 7 lentelės, 42 paveikslai, 175 literatūros šaltiniai, parašyta anglų kalba. Disertaciją sudaro 7 skyriai, padėka, sutrumpinimų, išvadų ir literatūros sąrašai. Kiekvieno skyriaus, pradedant nuo ketvirtojo, pabaigoje pateiktos išvados, išplaukiančios iš gautų rezultatų.

Pirmą skyrių sudaro įvadinė dalis, kurioje išdėstyta problematika, susijusi su darbe nagrinėjamais klausimas, pagrindiniai darbo tikslai, uždaviniai, mokslinis naujumas, ginamieji teiginiai, disertanto mokslinių darbų sąrašas, autoriaus ir bendraautorių indėlis.

Antras skyrius yra skirtas literatūros apžvalgai. Apžvelgiami lazerio spinduliuotės, mechaniškai ir termiškai sukelti periodiniai paviršiaus dariniai ir raibulių tipai. Apžvelgiama šviesos sąveika su medžiaga. Aprašomos bandinių fizikinės savybės.

Trečiame skyriuje aprašomos raibulių formavimo ir gardelių charakterizavimo eksperimento schemos. Pateikiami eksperimentiškai išmatuoti dangų abliacijos slenksčiai.

Ketvirtame skyriuje pateikiami pagrindiniai raibulių chromo dangoje ant stiklo padėklo formavimosi rezultatai, apšvietus ją į juostą sufokusuoto lazerio pluošto dalinai prisiklojančių impulsų seka.

Penktas skyrius skirtas raibulių formavimosi efekto pritaikymui periodinių difrakcinių gardelių gamybai.

Šeštame skyriuje aprašomas raibulių formavimosi galimybės tyrimas skirtingų metalų dangose. Parodoma, kad raibuliai formuojasi tik aukso dangoje.

Septintame skyriuje pateikiamas raibulių formavimosi modelis. Parodoma, kad raibulių formavimosi iniciatorius yra Plato-Reilio nestabilumas užvartos susidaryme lazerinės abliacijos metu. Taip pat parodoma, kad nusistovėjęs raibulių formavimasis vyksta dėl Marangoni konvekcijos efekto.

2 LITERATŪROS APŽVAGA

2.1 LAZERIO SPINDULIUOTĖS SUKELTI PERIODINIAI PAVIRŠIAUS DARINIAI IR RAIBULIŲ TIPAI

Lazeriu sukelti periodiniai paviršiaus dariniai ir raibuliai buvo aptikti ir eksperimentiškai tyrinėjami netrukus po lazerio išradimo [13]. Pirma plačiai paplitusi ir priimtina teorija, aiškinanti raibulių susidarymo mechanizmą, buvo grindžiama kritusios ir nuo bandinio paviršiaus išsklaidytos bangų interferencija [14]. Ši teorinė prielaida buvo sėkminga, aiškinant tolygius paviršiaus darinius, kurių periodas buvo artimas spinduliuotės bangos ilgiui ir priklausė nuo bangos kritimo kampo į bandinio paviršių [15]. Šių raibulių orientacija buvo statmena krintančio pluošto elektrinio lauko poliarizacijai ir periodas buvo kelių šimtų nanometrų eilės [16]. Buvo atrasta matematinė išraiška siejanti raibulių periodą, spinduliuotės bangos ilgį, bandinio lūžio rodiklį, ir krintančios pluošto į bandinį kampą [17].

2.2 PLATO-REILIO NESTABILUMAS IR MARANGONI KONVEKCIJA

Plonas nejudantis skysčio cilindras ar krintanti skysčio čiurkšlė yra nestabili cilindro storio fluktuacijoms ir suskyla į lašus jei $\Lambda > 2\pi R_0$ kaip pavaizduota 1 pav. a. Šis reiškinys vadinamas Plato-Reilio (*angl. Plateau-Rayleigh*) nestabilumu [18].



1 pav. (a) Plato-Reilio nestabilumas. Mažos cilindro storio fluktuacijos auga laike eksponentiškai, kol cilindras suskyla į lašelius, R_0 - yra cilindro radiusas, γ - paviršiaus įtempimo koeficientas, Λ -greičiausiai augančios modos periodas, t - cilindro evoliucija laike. (b) Marangoni konvekcija lazeriu perlydytame metale, kai d $\gamma/dT < 0$ [19].

Skysčio cilindras pakeičia savo formą į lašelių pavidalą, sumažinant sistemos paviršiaus energiją. Greičiausiai didėja lašeliai, kai storio fluktuacijų periodas lygus [20]: $\Lambda = 9,02R_0$, (1)

Lašelių radiusas auga eksponentiškai, kol jie visiškai atitrūksta vienas nuo kito. Charakteringas augimo laikas yra lygus [21]:

$$\tau_0 = 2,74 \sqrt{\frac{\rho R_0^3}{\gamma}},\tag{2}$$

čia ρ yra skysčio tankis.

Paviršiaus įtempimo koeficientas γ yra skysčio savybė, priklausanti nuo temperatūros ir skysčio cheminės sudėties [22]. Esant nedideliems temperatūros pokyčiams, paviršiaus įtempimo šiluminis koeficientas $d\gamma/dT$ yra konstanta, ir skystiems metalams paprastai turi neigiamą vertę [23]. Esant temperatūros gradientui dT/dx išilgai skysčio paviršiaus, atsiranda ir paviršiaus įtempimo gradientas $d\gamma/dx$, kuris sukelia slinkties jėgą išilgai paviršiaus [24]. Ši jėga priverčia skystį tekėti iš karštesnės vietos į šaltesnę (žr. 1 pav. b) [25]. Šis reiškinys yra vadinamas Marangoni arba kapiliarumo konvekcija. Skysčio tekėjimo greitis gali būti apskaičiuotas pagal [26]:

$$u = \frac{1}{\eta} \frac{\mathrm{d}\gamma}{\mathrm{d}T} \frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}x} h \,, \tag{3}$$

čia η - dinaminis skysčio klampumas, $d\gamma/dT$ - paviršiaus įtempimo šiluminis koeficientas, dT/dx - temperatūros gradientas išilgai paviršiaus, h - skysčio storis. Plonus skysčio sluoksnius apšvitinus Gauso pluoštu, dėl Marangoni konvekcijos, ant padėklo formuojasi sausos vietos. Dėl netolygaus kaitinimo paviršiaus įtempimo gradientas sukelia skysčio tekėjimą iš apšvitintos vietos centro ir sausų padėklo vietų atsiradimą [27].

2.3 DANGOS SUKIBIMAS SU STIKLO PADĖKLU

Skirtingų metalų dangos sukibimas su stiklo padėklu pateiktas 1 lentelėje.

<u> </u>	The second secon
Metalas	Dangos sukibimas su stiklo padėklu, [s. v.]
Ag	8
Al	60-80
Au	2
Cr	500
Cu	25-30

1 lentelė. Metalo dangos sukibimas su stiklo padėklu [28].

3 TYRIMO METODAI

Šiame skyriuje pateikta medžiaga buvo publikuota straipsniuose [A4], [A5] ir konferencijų pranešimuose [C8], [C9].

3.1 RAIBULIŲ FORMAVIMO EKSPERIMENTO SCHEMA

Eksperimentuose buvo naudojamas nanosekundinis lazeris NL202 (Ekspla) su skersiniu Gauso intensyvumo skirstiniu. Lazerio spinduliuotės bangos ilgis $\lambda = 1064$ nm, impulso trukmė $\tau_p = 9$ ns. Didžiausia impulso energija buvo $E_p = 2$ mJ. Lazerio pasikartojimo dažnis $f_{Rep} = 1$ kHz. Eksperimentinė schema pavaizduota 2 pav. Papildomai kai kurie eksperimentai buvo pakartoti, naudojant pikosekundinį lazerį FOXTROT (Ekspla, $\lambda = 1064$ nm, $\tau_p = 60$ ps, $E_p < 1$ mJ, $f_{Rep} = 1$ kHz).



2 pav. Principinė eksperimento schema: NL202 - nanosekundinis lazeris; T - teleskopas; M1, M2 - veidrodžiai; $\lambda/2$ - fazinė plokštelė; PP1, PP2 - poliarizatoriai; PC1 - Pokelso celė; CL - cilindrinis lęšis. Dešinėje pavaizduotas raibulių formavimosi procesas su persiklojančiais lazerio impulsais.

Lazerio pluoštelis buvo aštriai fokusuojamas, panaudojant acilindrinį lęšį, kurio židinio nuotolis buvo 10 mm. Lęšis buvo specialiai sumodeliuotas ir pagamintas kuo aštriau sufokusuoti pluoštelį į juostą per stiklo padėklą. Į juostą sufokusuoto pluoštelio matmenys buvo $w_{x0} = 2,5 \ \mu m$ ir $w_{y0} = 2,5 \ mm$. Skersinis energijos tankio pasiskirstymas pluoštelyje:

$$F(x,y) = F_0 e^{\frac{2x^2}{w_{x0}^2} \frac{2y^2}{w_{y0}^2}},$$
(4)

čia x ir y yra skersinės koordinatės, F_0 yra smailinis energijos tankis pluošto centre:

$$F_{0} = \frac{2E_{\rm p}}{\pi w_{\rm x0} w_{\rm y0}},\tag{5}$$

čia E_p yra lazerio impulso energija, w_{x0} ir w_{y0} pluošto radiusai x ir y krytimis.

Aliuminio, chromo, vario, sidabro ir aukso dangos buvo užneštos ant stiklo vakuuminio garinimo būdu. Bandymuose naudojamų dangų storis *h* buvo nuo 50 nm iki 200 nm. Padėklams buvo naudojamas paprastas langų stiklas (*angl. float glass*). Stiklo padėklo storis buvo 4,8 mm.

Bandiniai buvo perstumiami, naudojant didelio tikslumo pozicionavimo pavaras ALS25020 (Aerotech Ltd.) ir buvo apšvitinami dalinai persiklojančiais lazerio impulsais.

Suformuotų paviršinių darinių morfologiniai tyrimai buvo atlikti, naudojant optinį, atominės jėgos (AJM) ir skenuojantį elektroninį mikroskopus (SEM).

3.2 METALŲ DANGŲ ABLIACIJOS SLENKSČIAI

Metalinių dangų abliacijos slenksčiai buvo eksperimentiškai išmatuoti, pritaikant [29] pasiūlytą metodą. Buvo matuojami skylių diametrai, išabliuotų, naudojant skirtingas lazerio impulso energijos vertes. Abliacijos slenksčiai, išmatuoti visoms tirtoms metalo dangoms ant stiklo padėklo, yra pateikti 2 lentelėje. Raibulių formavimui buvo naudojamas lazerio energijos tankis 1,5-3 kartus didesnis už slenkstinį.

2 lentelė. Metalų dangų, kurių storis 100 nm abliacijos slenksčiai (dangų nuvalymo slenksčiai) F_{th} nuo stiklo padėklo.

Metalo danga	Abliacijos slenkstis, $F_{\rm th}$ [J·cm ⁻²]
Ag	0,74
Al	0,57
Au	1,57
Cr	1,51
Cu	0,88

3.3 GARDELIŲ CHARAKTERIZAVIMO EKSPERIMENTO SCHEMA

Gardelių, pagamintų savi-organizacijos būdu, difrakcinės savybės buvo tiriamos, naudojant eksperimentinę schemą [30], kuri pavaizduota 3 pav.:



3 pav. Gardelių tyrimo eksperimento schema.

Sukolimuotas HeNe lazerio pluoštelis ($\lambda = 632,8$ nm) su pluošto diametru ~ 100 µm uždengė tik mažą difrakcinės gardelės dalį (gardelės plotis ~ 2,5 mm). Gardelė buvo perstumiama *y* kryptimi ir buvo fotografuojami interferenciniai skirstiniai, panaudojus CCD kamerą. Gardelės periodas kito *y* krytimi todėl, kad ji buvo pagaminta su lazerio pluoštu, kuris *y* kryptimi turėjo Gauso skirstinį.

4 RAIBULIŲ FORMAVIMASIS CHROMO DANGOJE

Šiame skyriuje pateikta medžiaga buvo publikuota straipsniuose [A3], [A4], [A5] ir konferencijų pranešimuose [C3], [C5], [C6], [C7].

Ši dalis skirta aprašyti pagrindinius eksperimentinius raibulių formavimosi chromo sluoksnyje rezultatus. Pirmoje dalyje pateikiamas stiklinės kodinės liniuotės pavyzdys pagamintas, dirbant su aštriai į juostą sufokusuotu lazerio pluoštu, kai lazerio impulsai nepersikiloja. Antroje dalyje pateikiami rezultatai atrasto naujo raibulių formavimosi efekto, buvo dirbama su dalinai persiklojančiais impulsais. Aprašomi raibulių formavimosi langas ir raibulių atsistatymas po defekto chromo dangoje.

4.1 CHROMO DANGOS ABLIACIJA SU NEPERSIKLOJANČIAIS LAZERIO IMPULSAIS

Energijos tankis, reikalingas nuvalyti h = 100 nm storio chromo dangą nuo stiklo padėklo su vienu lazerio impulsu $F_{\text{th}} = 1,51 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$. Dirbant su aštriai į juostą sufokusuotu lazerio pluošteliu, kurio centre energijos tankis buvo didesnis nei abliacijos slenkstis buvo nuvalomos dangos juosteles (žr. 4 pav.).



4 pav. Optinio mikroskopo nuotrauka: chromo dangoje ant stiklo padėklo paeiliui nuvalytos penkios linijos. Kiekviena linija nuvalyta vienu lazerio impulsu. Energijos tankis į juostą sufokusuoto pluoštelio centre $F_0 = 2,26 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, atstumas tarp gretimų impulsų $\Delta x = 10 \text{ µm}$.

Nuvalytos linijos buvo lygiais kraštais. Kiekviena linija iš abiejų kraštų turėjo persilyžusio chromo užvartas. Užvartų netolygumai neviršijo 0,3 µm.

4.2 CHROMO DANGOS ABLIACIJA SU PERSILOJANČIAIS LAZERIO IMPULSAIS

Lazerio impulsai buvo artinami vienas prie kito, kol dalinai persiklojo. Taip pat buvo keičiamas energijos tankis, norint surasti optimalias sąlygas kodinių liniuočių gamybai su mažiausiu įmanomu periodu. Dirbant su dalinai persiklojančiais impulsais, kai energijos tankis viršijo chromo dangos abliacijos slenkstį, buvo pastebėtas naujas chromo dangos formavimosi į raibulius reiškinys.

4.2.1 Kvazi-periodinis skilimas

Esant energijos tankiams mažesniems už abliacijos slenkstį, chromo danga ant stiklo padėklo skilinėjo. Skilinėjimas buvo kvazi-periodinis ir skilimo kryptis sutapo su pluoštelio skenavimo kryptimi ir buvo statmena į juostą sufokusuotam pluošteliui (žr. 5 pav. a). Sumažinus impulsų persiklojimą, skilinėjimas tapo atsitiktinis (žr. 5 pav. b).



5 pav. Suskilinėjusi chromo danga (h = 100 nm) ant stiklo paviršiaus, apšvitinus ją persiklojančiais lazerio impulsais žemiau abliacijos slenksčio. a) $F_0 = 1,35 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, $\Delta x = 0,2 \text{ µm}$; b) $F_0 = 1,4 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, $\Delta x = 1,6 \text{ µm}$. Pluoštelis buvo orientuotas vertikaliai, skenavimo kryptis horizontali, iš kairės pusės į dešinę.

4.2.2 Raibulių formavimasis

Reguliarūs ir nereguliarūs raibuliai chromo dangoje ant stiklo padėklo formavosi savi-organizacijos būdu, kai energijos tankis viršijo chromo dangos abliacijos slenkstį (žr. 6 pav.).



6 pav. Raibuliai suformuoti chromo dangoje (h = 100 nm) dalinai persiklojančiais į juostą sufokusuoto lazerio impulsais: a) periodiniai raibuliai, $F_0 = 1.9 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, $\Delta x = 0.2 \text{ µm}$; b) kvaziperiodiniai raibuliai, $F_0 = 2.6 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, $\Delta x = 0.8 \text{ µm}$. Pluoštelis buvo orientuotas vertikaliai, skenavimo kryptis horizontali, iš kairės pusės į dešinę.

Raibulių formavimosi pradžia buvo nereguliari, tačiau procesas greitai nusistovėdavo ir jie tapdavo griežtai periodiniai. Tvarkingų raibulių formavimosi kryptis sutapo su pluoštelio skenavimo kryptimi ir buvo statmena į juostą sufokusuotam lazerio pluoštui. Raibulių formavimasis nebuvo įtakojamas lazerio pluošto poliarizacijos krypties ar tipo.

4.2.3 Raibulių formavimosi priklausomybė nuo apdirbimo parametrų

Buvo ištirta raibulių formavimosi priklausomybė nuo apdirbimo parametrų. Periodiniai raibuliai formavosi tik tam tikrame apdirbimo parametrų diapazone: lazerio energijos tankio ir žingsnio tarp impulsų (žr. 7 pav.).



7 pav. Raibulių nuotraukos, esant skirtingiems lazerio energijos tankiams ir postūmiams tarp impulsų. Chromo dangos storis h = 100 nm. Kiekvieno paveikslėlio dydis 19,5 µm × 19,5 µm.

Esant mažiems energijos tankiams, chromo danga suskilinėdavo. Esant vidutiniams energijos tankiams, formavosi periodiniai ir kvazi-periodiniai raibuliai. Esant dideliems energijos tankiams, chromo danga buvo visiškai nuvaloma nuo stiklo paviršiaus. Reguliarūs periodiniai raibuliai formavosi, tik esant tam tikro storio chromo dangoms (žr. 3 lentelė.)

3 lentelė.	Periodinių	raibulių	chromo	dangoje	ant	stiklo	padėklo	formavimosi	priklausomybė
nuo apdirł	oimo paramo	etrų ir da	ngos stor	rių.					

Chromo dangos	Energijos tankis	Postūmis tarp	Raibulių
storis,	pluošto centre,	impulsų,	periodas,
<i>h</i> [nm]	$F_0 \left[J \cdot cm^{-2} \right]$	$\Delta x [\mu m]$	Λ [μm]
190			nereguliarūs
150	1,6-2,1	0,2-0,6	3,6
120	1,4-2,1	0,1-0,8	4,0
100	1,7-2,7	0,1-0,9	4,4
80	1,1-2,1	0,1-0,5	3,6
50-60			nereguliarūs
35-40			nereguliarūs

4.3 IŠVADOS

Dalinai persiklojančių į liniją sufokusuoto lazerio pluošto impulsų seka inicijavo chromo dangos savi-organizaciją į periodinius raibulius, kai energijos tankis viršijo abliacijos slenksčio vertę. Buvo pademontuotas periodinių darinių, raibulių, formavimasis lazerinės abliacijos metu. Raibuliai išsidėstė periodiškai ($\Lambda \approx 4 \mu m$) lygiagrečiai skenavimo krypčiai.

5 PERIODINIŲ GARDELIŲ GAMYBA

Šiame skyriuje pateikta medžiaga buvo publikuota straipsniuose [A2], [A5] ir konferencijų pranešimuose [C8], [C9].

Šie eksperimentai skirti ištirti reguliarių periodinių raibulių formavimąsi kaip būdą gaminti difrakcines gardeles. Taip pat buvo siekiama ištirti galimybę kontroliuoti formuojamų gardelių periodą.

5.1 PERIODINIŲ GARDELIŲ GAMYBA

Chromo dangos savi-organizacijos procesas, abliuojant dalinai perisklojančiais į juostą sufokusuotais lazerio impulsais, buvo panaudotas difrakcinių gardelių gamybai (žr. 8 pav.).



8 pav. Chromo gardelė ant stiklo padėklo, suformuota savi-organizacijos būdu, apšvitinus nanosekundiniais lazerio impulsais. (a) SEM nuotrauka: lazerio energijos tankis pluoštelio centre $F_0 = 2,0 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, postūmis tarp impulsų $\Delta x = 0,6 \mu\text{m}$, (b) optinio mikroskopo nuotrauka: $F_0 = 1,9 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, $\Delta x = 0,3 \mu\text{m}$. Pluoštelis buvo orientuotas vertikaliai, skenavimo kryptis horizontali iš kairės pusės į dešinę.

Eksperimentiškai buvo suformuotos periodinės difrakcinės gardėlės, kurių ilgis y kryptimi siekė 1 cm. Gardelės ilgį ribojo bandinio dydis ir pozicionavimo sistemos eiga. Gardelės visame ilgyje buvo griežtai periodiškos ir neturėjo defektų.

5.2 GARDELĖS PERIODO VALDYMAS

Gardelių periodas buvo nustatytas, analizuojant difrakcinius paveikslus CCD kamera. Periodas buvo apskaičiuotas pagal difrakcijos maksimumų sąlygą [31]:

 $A\sin \varphi = m\lambda$,

(6)

čia Λ - gardelės periodas, φ -difrakcijos kampas, m - difrakcijos eilė, lazerio bangos ilgis λ (633 nm). Gardelės periodo priklausomybė nuo energijos tankio pluoštelio centre ir postūmio tarp impulsų pavaizduota 9 pav.



9 pav. Gardėlės periodo priklausomybė: (a) nuo energijos tankio pluoštelio centre; (b) nuo postūmio tarp impulsų. Taškai - eksperimentiniai duomenys, ištisinė linija - tiesinė taškų aproksimacija.

Gardelės periodas tiesiškai augo, didėjant energijos tankiui, ir tiesiškai mažėjo, didėjant postūmiui tarp impulsų. Tai leido lanksčiai kontroliuoti gardelės periodą nuo 2,5 iki 4 µm.

5.3 Išvados

Raibuliai formavosi periodiškai lygiagrečiai spindulio skenavimo krypčiai. Gardelių periodas buvo valdomas nuo 2,5 iki 4 µm. Gardelių periodas tiesiškai augo, didėjant energijos tankiui pluoštelio centre, ir tiesiškai mažėjo, didėjant atstumui tarp persiklojančių lazerio impulsų.

Difrakcinės gardelės gali būti gaminamos lazerio sukeltu savi-organizacijos būdu. Plokščios viršūnes lazerio pluoštas turi būti naudojamas, siekiant pagaminti griežtai vienodo periodo difrakcines gardeles.

6 RAIBULIŲ FORMAVIMASIS ALIUMINIO, VARIO, AUKO IR SIDABO DANGOSE

Šiame skyriuje pateikta medžiaga buvo publikuota straipsniuose [A1] ir konferencijų pranešimuose [C4].

Metalo dangos apdirbimas, persiklojančiais lazerio impulsais su aštriai į juostą sufokusuotu lazerio pluoštu, buvo išbandytas skirtingiems metalams. Buvo siekiama suprasti, kas inicijuoja raibulių formavimąsi, ir ar jis įmanomas visiems metalams. Skirtingas sluoksnio elgesys lazerio spinduliuotės poveikyje buvo stebimas kiekvienam metalui.

6.1 TRIJŲ RŪŠIŲ RAIBULIAI AUKSO DANGOJE

Aukso dangoje ant stiklo padėklo, apšvitinus ją persiklojančiais aštriai į juostą sufokusuoto lazerio impulsais, formavosi trijų rūšių raibuliai: skersiniai, išilginiai (analogiški raibuliams chromo dangoje) ir pasvirę (žr. 10 pav.).



10 pav. Trijų rūšių raibulių aukso dangoje SEM nuotraukos, esant skirtingiems lazerio energijos tankiams ir postūmiams tarp impulsų. Aukso dangos storis h = 100 nm. Kairėje pasvirę, viduryje išilginiai ir dešinėje skersiniai raibuliai. Pluoštelis buvo orientuotas vertikaliai, skenavimo kryptis horizontali iš kairės pusės į dešinę. Kiekvieno paveikslėlio dydis 120 µm × 120 µm. Atkreipiam dėmesį, kad postūmis tarp impulsų yra daug mažesnis nei chromo atveju.

Kadangi lazerio impulso energija buvo parinkta virš dangos nuvalymo slenksčio, pirmas lazerio impulsas eksperimente pašalindavo dangą ir susiformuodavo užvartos. Raibulių struktūros, priešingai chromo atvejui, formavosi su tam tikru užlaikymu (postūmiu) atžvilgiu pirmuoju impulsu nuvalytos Au dangos vietos.

Pasivirusių raibulių periodas buvo ~ 5 μ m, ir kampas tarp vienu impulsu nuvalytos juostos ir raibulių buvo 57-63 laipsniai. Išlikusioje po lazerio poveikio aukso dangoje tarp pirmu impulsu nuvalytos vietos ir pasvirusiųjų raibulių formavimosi zonos galima pastebėti kristalinę dangos struktūrą. Lazerio poveikyje amorfinė danga kristalizuojasi ir, matomai, dėl dislokacijų formuojasi "eglutės" pavidalo struktūra.

Išilginių raibulių periodas buvo $\sim 4 \mu m$, panašus į stebimą chromo dangoje.

Skersinių raibulių periodas (~ 6 μ m) beveik nepriklausė nuo atstumo tarp impulsų ir kito ribose nuo 5,6 μ m iki 7,1 μ m. Nuvalytos linijos plotis pluošto skenavimo kryptimi buvo ~ 3 μ m, ir likusio aukso linija taip pat buvo ~ 3 μ m pločio. Skersinių raibulių formavimasis nebuvo visiškai stabilus ir gali būti paaiškinamas lazerio pluoštelio nesugebėjimu nuvalyti susidariusios užvartos.

6.2 ALIUMINIO, VARIO IR SIDABRO DANGOSE RAIBULIAI NESUSIDARO

Aliuminio danga ant stiklo padėklo buvo visiškai nuvaloma, kai lazerio energijos tankis viršijo abliacijos slenkstį. Raibulių formavimasis aliuminio dangoje nebuvo stebimas. Vario dangą, apdirbant dalinai persiklojančiais į juostą sufokusuoto lazerio impulsais, formavosi sub-mikrometrinės 700 - 900 nm salelės prikibusios prie stiklo padėklo. Salelių formavimasis aiškinamas drėkinimo išnykimu (*angl. dewetting*), kai ploname išsilydžiusiame metalo sluoksnyje konkuruoja Van der Valso traukos jėga su stiklo padėklu ir metalo paviršiaus įtempimo jėga. Panašūs dariniai vario dangoje lazerio spinduliuotės poveikyje buvo stebimi [32]. Reguliarūs raibuliai vario dangoje ant stiklo nesiformavo. Dėl prasto sukibimo su stiklo paviršiaus. Joks raibulių formavimasis nebuvo stebimas.

6.3 Išvados

Skirtingas metalinių dangų elgesys buvo stebimas, apšvitinus jas į juostą sufokusuoto lazerio pluošto dalinai prisiklojančių impulsų seka, kai energijos tankis viršijo abliacijos slenkstį. Išilginiai raibuliai formavosi tik chromo ir aukso dangose siaurame lazerinio apdirbimo parametrų lange.

7 RAIBULIŲ FORMAVIMOSI MODELIAVIMAS

Šiame skyriuje pateikta medžiaga buvo publikuota straipsniuose [A1] ir konferencijų pranešimuose [C3], [C4], [C5].

Ši dalis skirta įsiaiškinti pagrindinius fizikinius mechanizmus, sukeliančius griežtai periodinių raibulių formavimąsi. Pirmoje dalyje parodoma, kad raibulių formavimosi pradžia atsiranda dėl Plato-Reilio nestabilumo cilindrinės užvartos susidarymo metu. Antroje dalyje parodoma, kad Marangoni konvekcija yra pagrindinė jėga, lemianti tolygų nusistovėjusį periodinių raibulių formavimąsi.

7.1 RAIBULIŲ FORMAVIMOSI MODELIS

Buvo sukurtas raibulių formavimosi modelis, kuris paaiškina eksperimentiškai stebimus reiškinius chromo dangą paveikiant lazerio spinduliuote (žr. 11 pav.)



11 pav. Raibulių formavimosi stadijos: (a) chromo danga ant stiklo padėklo; (b) chromo danga apšviečiama su į juostą sufokusuotu lazerio pluoštu iš stiklo pusės ir nuvaloma chromo juosta; (c) nuvalytos linijos kraštuose susidaro cilindro formos užvartos; (d) užvartos susitraukia į periodiškai išdėstytus lašus dėl Plato-Reilio nestabilumo; (e) antras dalinai persiklojęs lazerio impulsas pastumia susidariusią užvartą x kryptimi ir padidėja periodiškai išsidėstę lašai; (d) apdirbant dalinai persiklojančių impulsų seka, nusistovi raibulių formavimasis dėl Marangoni konvekcijos efekto.

Modelis buvo suskirstytas į dvi pakopas: raibulių formavimosi inicijavimą ir nusistovėjusį raibulių formavimąsi. Inicijavimas prasideda, kai chromo danga apšviečiama į juostą sufokusuotu lazerio impulsu iš stiklo pusės. Taip yra nuvaloma chromo dangos juosta, kurios kraštuose susidaro cilindro formos užvartos. Užvartų forma yra nestabili ir išsilydęs chromas susitraukia į periodiškai išsidėsčiusius lašus dėl Plato-Reilio nestabilumo. Antras, dalinai persiklojantis impulsas, perlydo užvartą, periodiškai išsidėstę lašai dar padidėja ir užvarta pasislenka *x* kryptimi dėl Marangoni konvekcijos. Dalinai persiklojančių impulsų seka toliau stumia užvartą *x* kryptimi ir perdislokuoja išlydytą metalą iš užvartos į raibulius dėl Marangoni konvekcijos efekto.

7.2 PLATO-REILIO NESTABILUMAS CILINDRINĖS UŽVARTOS SUSIDARYME

Persilydžiusio chromo cilindrinės užvartos formavosi, abliuojant chromo dangą ant stiklo padėko su aštriai į juostą sufokusuoti lazerio pluoštu. Užvartų profilis buvo ištirtas, panaudojant AJM (žr. 12 pav. a). Užvartų aukštis siekė iki 400 nm, kai chromo dangos storis buvo h = 100 nm. Susidariusi stora užvarta nebegalėjo būti nuvalyta sekančiu lazerio impulsu, kadangi abliacijos slenkstis tiesiškai priklauso nuo metalo storio [33]. Plato-Reilio nestabilumas privertė išlydytą metalą cilindrinėje užvartoje susibėgti į periodiškai išsidėsčiusius lašelius su teoriškai nusakomu periodu Λ pagal (1). Persilydžiusio chromo užvartos storio ir Plato-Reilio nestabilumo periodo priklausomybė nuo energijos tankio pluoštelio centre pateikta 12 pav. b.



12 pav. (a) 3D AJM nuotrauka chromo dangos ant stiklo padėklo, paveiktos vienu su į juostą sufokusuotu lazerio pluošto impulsu ($F_0 = 1.9 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$). Viduryje matyti nuvalytas stiklas iš abiejų kraštų susidariusios cilindrinės užvartos. Λ - yra periodas susidariusių lašelių cilindrinėje užvartoje dėl Plato-Reilio nestabilumo; (b) Užvartos dydžio ir Plato-Reilio nestabilumo periodo priklausomybė nuo energijos tankio pluoštelio centre. Skaičiai eksperimentinių taškų apačioje rodo santykį tarp nestabilumo periodo ir užvartos dydžio.

Raibulių periodo ir užvartų dydžio vidurkis yra artimas 9,02 iš (1) išraiškos ir tai yra akivaizdus įrodymas, kad cilindrinė užvarta suskyla į lašelius dėl Plato-Reilio nestabilumo. Cilindrinių užvartų formavimosi schema pavaizduota 13 pav.



13 pav. Cilindrinių užvarų susidarymo schema. Gauso pluoštu abliuojama chromo danga ant stiklo padėklo, F - energijos tankis, F_0 - energijos tankis pluošto centre, $F_{\text{th v}}$ - išgarinimo slenkstis, $F_{\text{th m}}$ - išlydimos slenkstis, $2w_{0x}$ pluošto diametras x kryptimi, D_{xv} - išgarinto chromo plotis, $D_{x \text{m}}$ - išlydyto chromo plotis, x_{rim} - išlydyto chromo plotis, h - chromo dangos storis, \mathbf{u} - Marangoni greitis, dT/dx - temperatūros gradientas, $d\gamma/dx$ - paviršiaus įtempimo gradientas išlydytame chrome, t - laikas.

Teorinis Plato-Reilio nestabilumo periodas pagal (1) yra lygus $\Lambda = 3,6 \,\mu\text{m}$ ir charakteringas cilindrinės užvartos virtimo į lašeliu laikas pagal (2) yra $\tau_0 = 44 \,\text{ns}$. Surasti Plato-Reilio nestabilumo periodas ir formavimosi laikas sutampa su eksperimentiškai išmatuotais periodu ir skysto chromo egzistavimo laiku. Tai pagrindžia mūsų teiginį, kad Plato-Reilio nestabilumas yra atsakingas už cilindrinės užvartos virtimą į periodiškai išdėstytus lašelius.

Užvartos, kuri susiformuoja lazerinės abliacijos metu, dydis priklauso nuo abliuojamo metalo tipo. Didžiausia užvarta formavosi chromo dangoje ant stiklo padėklo (žr. 14 pav.).



14 pav. SEM nuotraukos skylių ir susiformavusių užvartų, išabliuotų vienu lazerio impulsu. Dangų storis 100 nm.

Didžiausia užvarta formavosi chromo dangoje ant stiklo, kurio sukibimas su stiklo padėklu yra didžiausias (žr. 1 lentelė). Užvartos kitų metalų dangose susidaro gerokai mažesnės, kadangi dėl prasto sukibimo su padėklu metalas yra atplėšiamas nuo dangos abliacijos metu.

7.3 MARANGONI KONVEKCIJA NUSISTOVĖJUSIAME RAIBULIŲ FORMAVIMESI

Raibulių profiliai buvo tiriami AJM. Buvo nustatyta, kad, besiformuojant reguliariems periodiniams raibuliams, praktiškai visa chromo dangos masė transformuojasi į raibulius ir tik maža dalis chromo išgaruoja. Reguliarių raibulių formavimasis yra nusistovėjęs procesas, kadangi kiekvienas sekantis lazerio impulsas nepakeičia raibulių formos, o tik visas paveikslas pasislenka per postūmį tarp gretimų impulsų Δx . Taip pat buvo nustatyta lazerio impulso padėtis (žr. 15 pav. a).



15 pav. (a) 3D AJM nusistovėjusio periodinių raibulių formavimosi vaizdas. Kairėje pusėje į periodinius raibulius susiformavęs persilydęs chromas, dešinėje - lazeriu nepaveikta chromo danga ant stiklo padėklo. Punktyrinė linija simbolizuoja lazerio impulso poziciją ant užvartos raibulių pabaigoje. Pluoštelis buvo orientuotas vertikaliai, skenavimo kryptis horizontali, iš kairės pusės į dešinę. $F_0 = 1.9 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, $\Delta x = 0.3 \text{ µm}$, h = 100 nm. (b) Suprastinta į nusistovėjusių raibulių pabaigą panaši geometrija. Punktyrinė linija simbolizuoja lazerio impulso poziciją ant užvartos raibulių pabaigą panaši geometrija.

Buvo ieškomas temperatūros skirstinys nusistovėjusiame raibulių susidaryme, apšvitinus paskutiniu lazerio impulsu. COMSOL Multiphysics modeliavimo aplinkoje buvo sukurta geometrija (15 pav. b) panaši į raibulių AJM nuotrauką (15 pav. a). Siekiant surasti temperatūros skirstinį, raibulių geometrijoje buvo skaitmeniniu būdu išspręsta šilumos laidumo lygtis. Šilumos šaltinis buvo parinktas stačiakampio laikinės formos lazerio impulsas:

$$I(t) = \frac{F}{\tau_{\rm p}} \operatorname{rect}(t/\tau_{\rm p}), \tag{7}$$

čia F = F(x, y) yra lazerio skersinis energijos tankio pasiskirstymas aprašomas (4) išraiška, pluoštelio energijos tankis nekinta y kryptimi nes $w_{y0} >> y$ ir Gauso pasiskirstymą x kryptimi. Stačiakampio formos funkcija aprašo laikinę impulso formą, τ_p yra impulso trukmė. Chromas yra kaitinamas iš stiklo pusės vietoje, pažymėtoje punktyrine linija 15 pav. Energijos tankis $F_0 = 1,0$ J·cm⁻², impulso trukmė $\tau_p = 10$ ns. Suskaičiuotas temperatūros skirstinys pateiktas 16 pav.



16 pav. (a) Temperatūros skirstinys raibulių pabaigoje, apšvitinus lazerio impulsu. (b) viršutinis paveikslėlis rodo temperatūras gradientą x kryptimi, dešinys paveikslėlis rodo moduliuotą temperatūros pasiskirstymą išilgai raibuliu y kryptimi, apšvitinus lazerio impulsu su tolygiu skirstiniu.

Apšvitinus chromo užvartą Gauso pluoštu, x kryptimi atsiranda temperatūros gradientas (žr. 16 pav. b), kuris sąlygoja chromo dangos traukimąsi iš kairės į dešinę dėl Marangoni konvekcijos. Apšvietus chromo dangą tolygiu pluošteliu y kryptimi, atsiranda temperatūros moduliacija užvartoje (žr. 16 pav. b). Didžiausias temperatūros skirtumas išilgai užvartos tarp jos sąlyčio su raibuliais vietos ir tarpų tarp raibulių siekia 400 °C. Temperatūros moduliacija atsiranda dėl to, kad šiluma difunduoja į raibulius, o tarpuose tarp raibulių niekur difunduoti negali. Todėl užvarta tarpuose tampa karštesnė nei raibuliai. Atsiranda Marangoni konvekcija ir metalas ima tekėti iš tarpų į raibulius.

Marangoni greitis gali būti įvertintas pagal (3) ir yra lygus $u=10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. Aušimo greitis chromo dangai yra ~ $10^{11} \text{ K} \cdot \text{s}^{-1}$ [34].

Lazerio impulsas kaitina chromą tol, kol pasiekiama garavimo temperatūra T_v . Impulsui pasibaigus šiluma difunduoja į stiklo padėklą, konvekcijos būdu nunešama aplink esančio oro ar prarandama spinduliniu būdu, kol chromo temperatūra nukrinta iki lydimosi taško T_m . Laikas, kol chromas egzistuoja skystoje būsenoje, gali būti įvertintas padalinus temperatūrų skirtumą $T_v - T_m$ iš aušimo spartos ir yra lygus ~ 100 ns.

Atstumas, kurį chromas nukeliauja per laiką, kol jis yra išsilydęs, galima įvertinti padauginus Marangoni greitį iš lydalo egzistavimo laiko $10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1} \times 100 \text{ ns} = 1 \text{ } \mu\text{m}$. Įvertintas atstumas yra artimas raibulių pusperiodžiui.

7.4 IŠVADOS

Skaitmeninio modeliavimo būdu, buvo patikrinti skirtingi fizikiniai reiškiniai, kurie galėtų būti atsakingi už periodinių raibulių formavimąsi chromo dangoje ant stiklo padėklo.

Buvo sukurtas raibulių formavimosi chromo dangoje ant stiklo modelis, apšvietus dalinai persiklojančių lazerio impulsų seka, kuris dera su eksperimentiniai rezultatais ir modeliavimo duomenimis. Užvartos lazeriu išabliuotos linijos kraštuose susitraukia į periodiškai išdėstytus lašus dėl Plato-Reilio nestabilumo, kurie yra pradinis raibulių augimo užkratas. Reguliarus raibulių formavimasis nusistovi dėl Marangoni konvekcijos.

IŠVADŲ SĄRAŠAS

1. Dalinai persiklojančių į liniją sufokusuoto lazerio pluošto impulsų seka inicijavo chromo dangos savi-organizaciją į periodinius raibulius, kai energijos tankis viršijo abliacijos slenksčio vertę. Buvo pademontuotas periodinių darinių, raibulių, 100 nm storio chromo dangoje ant stiklo padėklo formavimasis lazerinės abliacijos metu, kai energijos tankis buvo 1,7-2,7 J·cm⁻² ir postūmis tarp impulsų buvo 0,3-0,6 µm. Raibuliai išsidėstė periodiškai ($\Lambda \approx 4$ µm) lygiagrečiai skenavimo krypčiai.

2. Reguliarus raibulių formavimasis nusistovėdavo po 3-5 dalinai persiklojančių lazerio impulsų. Raibulių formavimasis atsistatydavo po chromo dangoje sukurto defekto.

3. Raibulių formavimasis chromo dangoje ant stiklo padėklo gali būti panaudotas difrakcinių gardelių gamybai.

4. Gardelių periodas buvo valdomas nuo 2,5 iki 4 μm. Gardelių periodas tiesiškai augo, didėjant energijos tankiui pluoštelio centre, ir tiesiškai mažėjo, didėjant atstumui tarp persiklojančių lazerio impulsų.

5. Skirtingas metalinių dangų elgesys buvo stebimas, apšvitinus jas į juostą sufokusuoto lazerio pluošto dalinai prisiklojančių impulsų seka, kai energijos tankis viršijo abliacijos slenkstį. Persiklojantys lazerio impulsai inicijavo trijų rūšių saviorganizaciją aukso dangoje ant stiklo padėklo, kai lazerio energijos tankis kelis kartus viršijo vieno dangos nuvalymo abliacijos slenkstį. Savi-organizacija aliuminio, vario ir sidabro dangose nebuvo stebima.

6. Buvo sukurtas ir patvirtintas raibulių formavimosi chromo dangoje ant stiklo padėklo modelis, apšvietus dalinai persiklojančių lazerio impulsų seka, kuris patvirtintas eksperimentiniais duomenimis ir modeliavimo rezultatais. Užvartos, lazeriu išabliuotos linijos kraštuose, susitraukia į periodiškai išdėstytus lašus dėl Plato-Reilio nestabilumo, kurie yra pradinės raibulių augimo užuomazgos. Reguliarus raibulių formavimasis nusistovi dėl Marangoni konvekcijos. Temperatūros moduliacija išilgai raibulių formavimosi linijos ir paviršiaus įtempimo koeficiento mažėjimas, kylant temperatūrai, inicijuoja Marangoni efektą, - chromo lydalo judėjimą iš karštos zonos į šaltą.

LITERATŪROS SĄRAŠAS

- [1] H. J. Levinson, *Principles of Lithography*. 3 edn (SPIE, Bellingham, 2010).
- [2] Y. Sarov *et al.*, Fabrication of diffraction gratings for microfluidic analysis. *Bulg. J. Phys.* **29**, 17-29 (2002).
- [3] A. Hirai, M. Kajima and S. Telada in *Handbook of Optical Metrology: Principles and Applications* (ed. T. Yoshizawa) Ch. 16, 393-410 (CRC Press, Boca Raton, 2008).
- [4] H. A. Macleod, *Thin-Film Optical Filters* (CRC Press, Boca Raton, 2010).
- [5] H.-E. Schaefer, *Nanoscience: The Science of the Small in Physics, Engineering, Chemistry, Biology and Medicine* (Springer, Berlin, 2010).
- [6] K. K. B. Hon, L. Li and I. M. Hutchings, Direct writing technology--Advances and developments. *CIRP Annals Manufacturing Technol.* **57**, 601-620 (2008).
- [7] J.-G. Kim, S.-H. Cho, T.-J. Je, D.-S. Choi and K.-H. Whang, Surface pattern formation on Cr thin film with ultrafast laser pulse. *Appl. Phys. A* **101**, 345-348 (2010).
- [8] F. Mücklich and A. F. Lasagni in *Functional Properties of Bio-Inspired Surfaces* (eds E. A. Favret and N. O. Fuentes) Ch. 10, 281-308 (World Sci. Publishing Co., Singapore, 2009).
- [9] K. Venkatakrishnan, P. Stanley, B. K. A. Ngoi, B. Tan and L. E. N. Lim, Femtosecond pulsed laser direct writing system. *Opt. Eng.* **41**, 1441-1445 (2002).
- [10] Y. Morishige, High-accuracy laser mask repair technology using ps UV solid state laser. *Proc. SPIE* **4426**, 416-423 (2002).
- [11] K. Regelskis and G. Račiukaitis. Method and equipment for grating formation. Lithuania patent (2006).
- [12] O. Varlamova, F. Costache, J. Reif and M. Bestehorn, Self-organized pattern formation upon femtosecond laser ablation by circularly polarized light. *Appl. Surf. Sci.* 252, 4702-4706 (2006).
- [13] M. Birnbaum, Semiconductor Surface Damage Produced by Ruby Lasers. J. Appl. Phys. 36, 3688-3689 (1965).
- [14] J. E. Sipe, J. F. Young, J. S. Preston and H. M. Van Driel, Laser-induced periodic surface structure. I. Theory. *Phys. Rev. B* 27, 1141-1154 (1983).
- [15] J. F. Young, J. S. Preston, H. M. Van Driel and J. E. Sipe, Laser-induced periodic surface structure. II. Experiments on Ge, Si, Al, and brass. *Phys. Rev. B* 27, 1155 (1983).
- [16] Q.-Z. Zhao, S. Malzer and L.-J. Wang, Self-organized tungsten nanospikes grown on subwavelength ripples induced by femtosecond laser pulses. *Opt. Express* 15, 15741-15746 (2007).
- [17] M. Csete and Z. Bor, Laser-induced periodic surface structure formation on polyethylene-terephthalate. *Appl. Surf. Sci.* **133**, 5-16 (1998).
- [18] T. E. Faber, *Fluid Dynamics for Physicists* (Cambridge, New York, 1995).
- [19] K. Wissenbach *et al.* in *Tailored Light 2* (ed. R. Poprawe) 173-240 (Springer, Berlin, 2011).
- [20] D. Joseph, T. Funada and J. Wang, *Potential Flows of Viscous and Viscoelastic Liquids*. 1 edn (Cambridge, New York, 2008).
- [21] V. Cardoso and Ó. J. C. Dias, Rayleigh-Plateau and Gregory-Laflamme Instabilities of Black Strings. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 181601 (2006).

- [22] B. C. Allen in *Liquid Metals, Chemistry and Physics* (ed. S. Z. Beer) 161-212 (Marcel Dekker, New York, 1972).
- [23] I. Takamichi and R. I. L. Guthrie, *The physical properties of liquid metals* (Clarendon Press, Oxford, 1988).
- [24] H.-J. Butt and M. Kappl, *Surface and Interfacial Forces* (Wiley, Weinheim, 2010).
- [25] A. Kuznetsov, J. Koch and B. Chichkov, Nanostructuring of thin gold films by femtosecond lasers. *Appl. Phys. A* **94**, 221-230 (2009).
- [26] Y. Kaganovskii, H. Vladomirsky and M. Rosenbluh, Periodic lines and holes produced in thin Au films by pulsed laser irradiation. J. Appl. Phys. 100, 044317 (2006).
- [27] D. A. Willis and X. Xu, Transport Phenomena and Droplet Formation During Pulsed Laser Interaction With Thin Films. *J. Heat Transfer* **122**, 763-770 (2000).
- [28] P. Benjamin and C. Weaver, The Adhesion of Evaporated Metal Films on Glass. *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **261**, 516-531 (1961).
- [29] J. M. Liu, Simple technique for measurements of pulsed Gaussian-beam spot sizes. *Opt. Lett.* 7, 196-198 (1982).
- [30] M. Elbandrawy and M. C. Gupta, Optical characteristics of femtosecond laser micromachined periodic structures in Si <100>. *Appl. Opt.* **45**, 7137-7143 (2006).
- [31] A. S. Marathay in *Handbook of Optics* Vol. I (ed. M. Bass) Ch. 3, 3.1-3.31 (McGraw Hill, New York, 1995).
- [32] T. Hanabusa, K. Kusaka and O. Sakata, Residual stress and thermal stress observation in thin copper films. *Thin Solid Films* **459**, 245-248 (2004).
- [33] E. Matthias *et al.*, In-situ investigation of laser ablation of thin films. *Thin Solid Films* **254**, 139-146 (1995).
- [34] A. Jain, V. Kulkarni and D. Sood, Pulsed laser heating calculations incorporating vapourization. *Appl. Phys. A* **25**, 127-133 (1981).

SANTRAUKA ANGLŲ KALBA (SUMMARY)

The present PhD thesis is the experimental and theoretical analysis of ripple formation in the thin chromium film on a glass substrate under irradiation with a sequence of partially overlapping laser pulses. The beam of a nanosecond laser tightly focused to a line was applied for the back-side ablation of the thin chromium film on the glass substrate. The stripe-like area ablated with a single laser pulse had cylindrical ridges of the melted metal. The partially overlapping pulses formed a complicated structure made of the metal remaining from the ridges. Regular structures, ripples, were formed when laser fluence was slightly above the single-pulse removal threshold and the shift between pulses was less than half width of the stripe ablated with a single laser pulse. The regular ripples were located periodically with the period of 2.5 - 4 µm. Ripples were orientated perpendicularly to the long axis of the beam spot and their length increased with every shifted pulse. Formation of regular diffraction gratings was experimentally implemented by using the above-mentioned technique. The grating period changed linearly with the laser fluence and it decreased with increasing the shift between pulses. Different models of the ripple formation in the thin metal film were considered, and the Plateau-Rayleigh instability of the cylindrical ridge formation during laser ablation appeared to be the most probable process responsible for initiation of the ripple formation. The Marangoni convection of the molten metal from hot areas to cold ones was the stabilizing process of the steady ripple formation. The possible ripple formation was investigated in different metal films on the glass substrate: aluminum, copper, gold and silver. Diverse behavior of the films depending on the metal, the shift between pulses and laser fluence was observed. Strong film adhesion to the glass substrate was important for ridge formation. The cylindrical ridge formation during laser ablation was found to be essential for initiation of the ripple formation.

TRUMPOS ŽINIOS APIE DOKTORANTĄ

Vardas: Pavardė: Gimimo data: Gimimo vieta: El. paštas: Telefono nr.:	Mindaugas Gedvilas 1981-09-13 Šiauliai, Lietuva mgedvilas@ar.fi.lt +370 684 29431
Išsilavinimas: 2006 - 2011	Doktorantūros studijos, Vilniaus universitetas, Fizinių ir technologijos mokslų centro Fizikos institutas
2004 - 2006	Fizikos magistro diplomas (Lazerinė fizika ir optinės technologijos), Vilniaus universitetas
1999 - 2004	Fizikos bakalauro diplomas (Fizika), Vilniaus universitetas
1991 - 1999	Šiaulių "Ragainės" vidurinė mokykla
1987 - 1991	Šiaulių 18-oji vidurinė mokykla
Užklasinė veikla: 1996 - 1999	Ypatingai gabių mokinių papildomo ugdymo mokykla "Fizikos Olimpas"
1995 - 1999	Neakivaizdinė jaunųjų fizikų mokykla "Fotonas"
1994 - 1997	"Šiaulių dailės mokykla"
Darbo patirtis: 2006 - 2011	Jaunesnysis mokslo darbuotojas, Fizinių ir technologijos mokslų centro Fizikos institutas
2004 - 2006	Inžinierius, Fizinių ir technologijos mokslų centro Fizikos institutas
2003 - 2004	Inžinierius, Vilniaus universiteto teorinės fizikos ir astronomijos institutas
Kita: 2008	1-ojo Fizikos turnyro absoliutus nugalėtojas
2007	Geriausio studentų stendinio pranešimo 2 vieta LPM2007 konferencijoje, Vienoje, Austrijoje
1999	11-ojo Lietuvos moksleivių fizikos čempionato nugalėtojas